

Improvement of uniformity in chemical vapor deposition of silicon carbide using CFD

Jin-Won Seo^{***}, Jun-Woo Kim^{*}, Yoon-Soo Hahn^{*}, Kyoon Choi^{*,†} and Jong-Heun Lee^{**}

^{*}Icheon Branch, Korea Institute of Ceramic Eng. & Tech., Icheon 467-843, Korea

^{**}Dept. of Material Sci. & Eng., Korea University, Seoul 136-713, Korea

(Received October 28, 2014)

(Revised November 13, 2014)

(Accepted December 5, 2014)

Abstract In order to increase the thickness uniformity in chemical vapor deposition of silicon carbide, we have carried out CFD studies for a CVD apparatus having a horizontally-rotated 3-stage susceptor. We deposited silicon carbide films of 3C-SiC phase showing quite uniform thickness between stages but not uniform one in the stage. The cause of this nonuniformity is thought to be originated from the high rotational speed. And the uniformity between stages can be further increased with the 120° split type nozzles from CFD results. Through the formation of silicon carbide film on graphite substrates we can make oxidation-resistant and dust-free graphite components with high hardness for the semiconductor applications.

Key words CFD, CVD, Silicon carbide, Susceptor, Thickness uniformity

탄화규소 화학기상증착 공정에서 CFD를 이용한 균일도 향상 연구

서진원^{***}, 김준우^{*}, 한윤수^{*}, 최균^{*,†}, 이종흔^{**}

^{*}한국세라믹기술원 이천분원, 이천, 467-843

^{**}고려대학교 재료공학과, 서울, 136-713

(2014년 10월 28일 접수)

(2014년 11월 13일 심사완료)

(2014년 12월 5일 게재확정)

요약 탄화규소의 화학기상증착 중에 두께 균일성을 향상시키기 위하여 평행하게 회전하는 3단 서셉터를 포함하는 CVD 장치에 대하여 전산유체역학(CFD) 시뮬레이션을 수행하였다. 실제 증착 실험에서는 단 간의 두께 균일성은 상당히 만족스러웠으나 같은 단 위에서는 위치에 따라 두께가 균일하지 못한 3C-SiC 상이 얻어지는 것을 확인하였다. 불균일의 원인으로서는 서셉터의 회전 속도에 따른 영향으로 판단되었다. CFD 결과로부터 단 간의 균일성을 향상시키기 위해서는 120도 분기 노즐을 투입구에 설치하는 것이 바람직할 것으로 판단되었으며 단 내의 균일도 향상은 회전 속도를 줄임으로써 가능할 것으로 생각된다. 이렇게 제작된 탄화규소가 증착된 흑연 부품은 고경도, 내산화성 및 분진 억제 특성을 갖고 있어서 반도체용 부품으로 사용될 수 있다.

1. 서론

탄화규소는 전형적인 구조 재료로서 강도와 경도가 뛰어나고 화학적으로 안정하며 내열 특성이 뛰어나서 극한 환경인 항공/우주용 세라믹스나 내플라즈마/내화학 특성을 요하는 반도체 공정용 세라믹스로서 그 가치가 높다.

특히, 탄화물로서는 특이하게 대기 중에서도 상당 시간 동안 견딜 수 있는 내산화 특성까지 갖추고 있어서 점점 그 활용 범위가 넓어지고 있다[1]. 탄화규소를 CVD로 증착하는 방법은 MTS와 같이 규소와 탄소의 비가 1:1 인 액상의 원료에 수소를 버블링하여 열분해하는 방법으로 간단하게 제조할 수 있으나[2, 3] 열분해 시에 가스 투입구 근처에서 반응이 빠르게 일어나기 때문에 전체 반응기에 걸쳐서 균일하게 반응이 일어나도록 조절하기가 어렵다. 대부분의 연구가 단결정이나 에피택셜 성장과 관련된 시뮬레이션[4-7]이고 대면적의 다결정 후막에

[†]Corresponding author

Tel: +82-31-645-1456

Fax: +82-31-645-1456

E-mail: knchoi@kicet.re.kr

응용하고자 하는 연구[8]는 충분하지 못하였다. 본 연구에서는 양산용 시스템에 대하여 CFD 해석을 통하여 탄화규소 막의 증착 균일도를 향상시키기 위한 서셉터의 구조와 공정 조건에 대한 연구를 수행하였다.

2. 본 론

2.1. 계산방법

본 연구에서는 실제 반응기 내부를 CAD 프로그램을 사용하여 3차원 모델링을 하였으며, 상용코드인 COMSOL Multi-physics의 CFD 모듈과 Chemical 모듈을 커플링하여 계산을 진행하였다. CFD 해석을 위한 지배방정식으로 Navier-Stokes 방정식을 사용하였으며 3차원 비압축성 모델을 적용하였다. 처음 계산 진행시 난류 효과를 고려하여 $k-\epsilon$ 난류 모델을 적용하였으나 층류 모델을 적용한 계산 결과와 큰 차이를 보이지 않았으며, 층류를 적용하여 계산하였을 때 더 짧은 시간이 소요되었으므로 층류 모델을 사용하여 계산을 진행하였다. 탄화 규소의 증착에 사용되는 CVD 반응기는 이전의 논문에서 소개되었듯이[8] 양산용의 대형 챔버이다. Fig. 1은 전산 모사에 적용되는 유동 공간 만을 표시한 것으로 반응기 내부는 온도와 압력이 각각 1300°C , 100 torr로 일정한 등온 등압으로 경계조건을 설정하였으며 내부의 서셉터가 분당 3회 회전하도록 설정하였다. 상중하 세 곳의 가스 주입구 중 상부와 하부의 주입구를 통해 각각 알콘과 수소 가스를 1:1의 몰 비로 주입하였는데 각각의 가스의 유속은 0.3 m/s로 설정하였으며, 이 때 노즐 구조에 따른 가스 내부의 농도 분포를 알아보기 위해 3차원에서 CFD 해석을 수행하였다. 이 때, 다성분계의 확산에 대한 지배방정식은 Maxwell-Stefan 확산식[9]을 적용하였다. 여기서 알콘과 수소를 실제 CVD 공정의 모델 가스로 사용한 이유는 CVD 공정에서 발생하는 가스의 99% 이상이 수소와 염화수소인데 염화수소와 알콘의 분자량

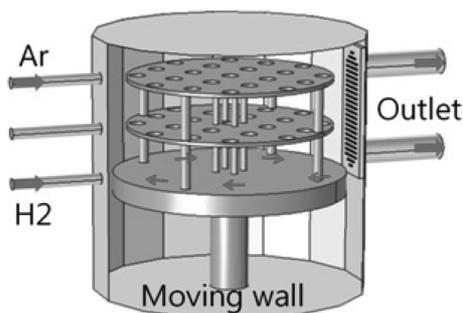


Fig. 1. Schematic of the fluid region of CFD simulation and the rotational object that is treated as moving wall.

이 각각 36.5와 40으로 유사하여 수소와 알콘의 혼합 양상을 관찰하면 유체 거동의 개략적인 양상을 확인할 수 있기 때문이다.

계산 영역에 대한 격자는 사용자 조정 격자를 사용하여 약 210만개의 사면체(tetrahedral) 격자를 생성하였으며, 스테이지의 구멍 및 지지대, 배출구의 확산관에 대하여 조밀한 격자를 형성시켜 계산의 정확도를 높이고자 하였다. 정상 상태(steady state)에서의 결과를 PARDISO solver를 사용하여 도출하였다. 해석에 사용된 워크스테이션은 DELL사의 PRECISION T7500(Intel(R) Xeon(R) CPU G2.67 GHz, RAM 192 GB)이었으며 스테이지 회전속도와 유속에 따라 최대 6시간 정도의 시간이 소요되었다.

2.2. 계산결과

Fig. 2에 평행한 노즐과 60도 갈라지는 노즐, 그리고 120도로 갈라지는 노즐을 설치하였을 때 각 단에서의 농도 분포를 도시하였다. 그 결과를 보면 120도 노즐을 사용하였을 때 상중하 3단에서의 가스 농도의 차이가 가장 작은 것을 확인할 수 있었고 같은 단 위에서는 회전속도가 빠를수록 농도의 편차가 적어지는 양상을 나타내었다. 한편, 가스의 유속의 경우에는 유속이 빨라질수록 각 단 간의 농도의 차이가 커지는 양상을 확인할 수 있었다.

실제 농도 분포의 평균 값과 표준 편차를 간단히 비교하기 위하여 Table 1에 비교하여 표시하였다. 각 단에서의 평균 값의 차이는 normal > 60° nozzle > 120° nozzle의 순으로 감소하는 것을 확인할 수 있었다. 한편, 각 단에서의 농도의 표준 편차 값에서는 같은 단 내에서의 농도의 편차를 알 수 있었는데 노즐에 따른 큰 차이를 발견할 수 없었다. 이전의 결과[10]로부터 이 값은 서셉터의 회전수와 유속에 의하여 더 크게 영향을 받음을 확인할 수 있었다.

2.3. 서셉터의 회전수에 따른 두께 균일도 분포 평가

실제 증착 실험은 2회에 걸쳐서 실시되었고 증착 조건은 증착 온도 1300°C , 압력은 50 Torr, H/Si(가스의 조

Table 1
The averages and standard deviations of the concentration of Ar with various nozzle types

Nozzle type	\bar{y} (σ) at 1st stage	\bar{y} (σ) at 2nd stage	\bar{y} (σ) at 3rd stage
Normal	0.394 (0.049)	0.218 (0.026)	0.146 (0.036)
60 degree	0.404 (0.071)	0.209 (0.044)	0.172 (0.031)
120 degree	0.383 (0.062)	0.213 (0.041)	0.186 (0.028)

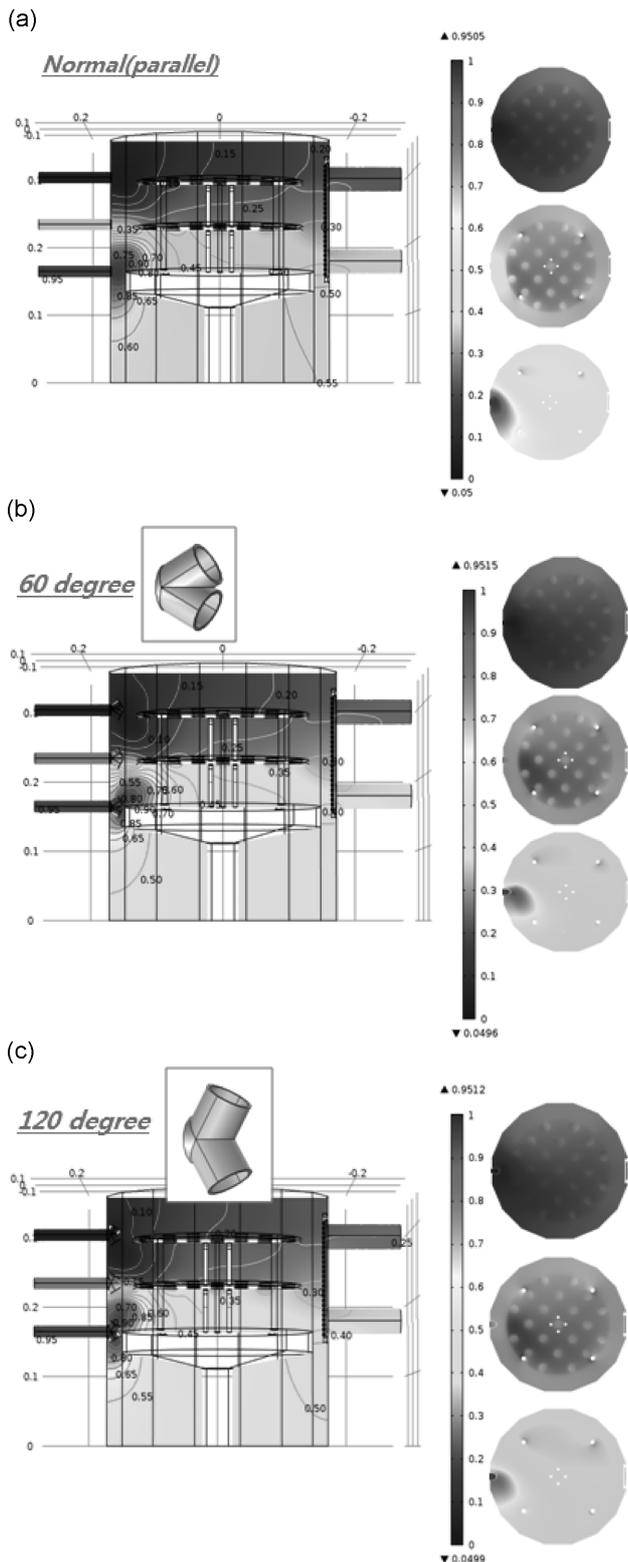
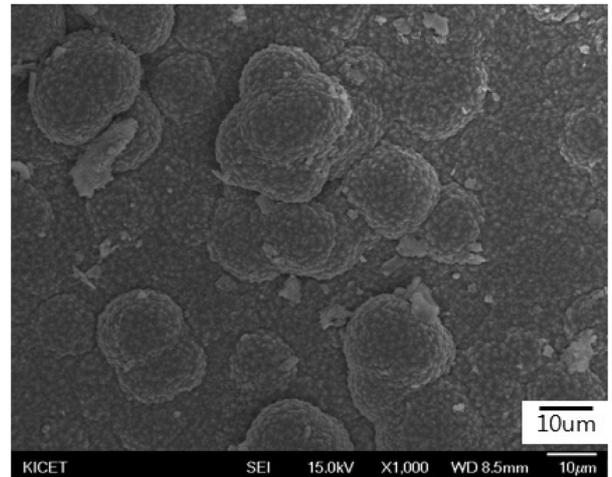
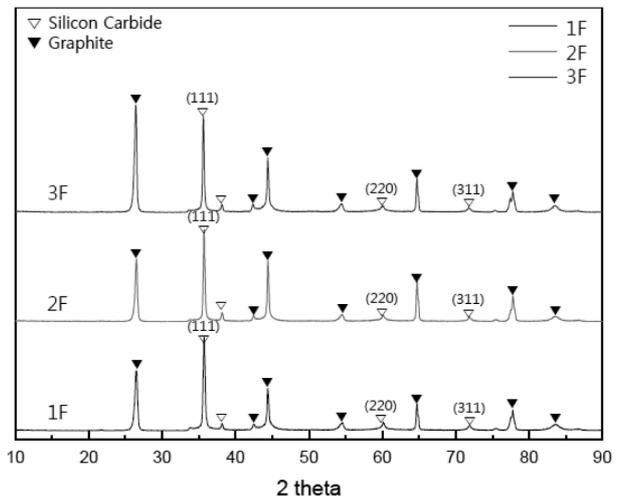


Fig. 2. Hydrogen content distribution on cross-section of CVD chamber with (a) flat nozzles, (b) 60° nozzles and (c) 120° nozzles.

성)가 16.5이며 2 rpm의 속도로 서셉터를 회전시킨 경우와 1200°C, 50 Torr에서 H/Si가 21.4 그리고 0.5 rpm으로 서셉터를 회전시킨 경우이다. 각 단에 5개의 샘플을



(a)



(b)

Fig. 3. SEM micrograph, (a) of SiC film and XRD patterns, (b) of 3 stages after deposition of SiC at 1200°C for 2 hours.

중양으로부터 거리가 다르게 배치하고 2~3시간 동안 증착하였다. 1200°C에서 얻어진 샘플의 미세조직과 X선 회절분석 결과를 Fig. 3의 (a)와 (b)에 각각 나타내었다. 두 조건 모두에서 3C-SiC 상의 치밀한 탄화 규소가 켈리플라워와 유사한 형상으로 증착된 것을 확인할 수 있었다.

2회의 증착 실험결과를 시간 당 증착 속도로 환산하고 각 단의 중심으로부터 거리에 따라 도시하면 Fig. 4와 같다. 1300°C에서 행하여진 실험의 경우가 증착 속도가 훨씬 높게 나타났는데 이는 높은 온도로 인하여 반응이 빠르게 일어났거나 수소 내의 원료가 되는 MTS(methyl-trichlorosilane: CH₃SiCl₃)의 비가 더 높아서 나타난 현상으로 추정된다.

실제 증착 물의 두께 균일도는 다른 변수보다 스테이지의 회전 수에 가장 크게 영향을 받는 것으로 추정되는데 두 경우를 비교해 보면 회전 수가 늘수록 스테이지

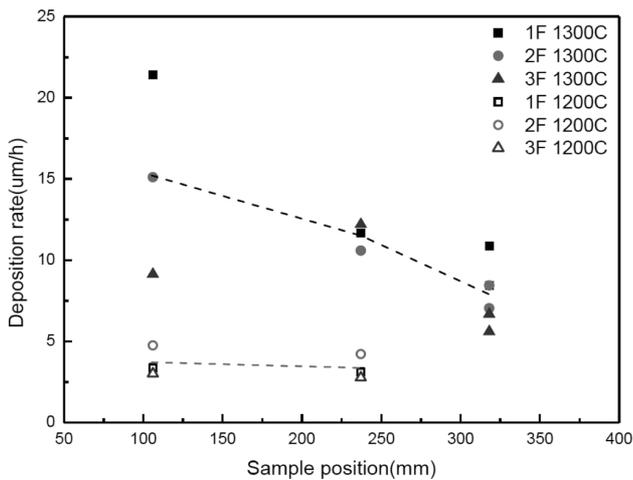


Fig. 4. Deposition rate of SiC films as a function of sample position from the center of susceptor.

의 중심부와 가장 자리에서 증착 속도의 차이가 좁혀지는 경향을 나타내었다. 또한 중심부에서의 각 단의 증착 속도 차이가 2 rpm의 경우에서 크게 나타나다가 0.5 rpm에서는 현저히 축소되는 양상을 나타내고 있다. 이와 같은 양상은 각 단의 중심으로 부터의 거리에 따라 가스의 유속이 가장자리로 진행되면서 빨라지는 것과 관련된 것으로 추정된다. 유속이 빨라지면 표면 반응이 일어날 수 있는 시간이 감소하므로 이에 따라 증착 속도가 감소되는 것으로 판단된다.

3. 결 론

3단의 회전하는 스테이지를 지닌 CVD 리액터에서 노즐의 구조를 바꿈에 따라서 각 단 위에서의 기상 농도의 변화를 전산유체역학 시뮬레이션을 통하여 살펴보았다. 그 결과, 각 단에서의 가스 농도의 차이는 노즐의 구조에 따라 큰 영향을 받는 것을 확인할 수 있었다. 실제 증착 실험을 통하여 확인한 결과, 각 단에서의 두께 균일도는 서셉터의 회전속도에 의하여 가장 큰 영향을 받으며 균일도를 향상시키기 위해서는 가능하면 느리게 회전 시킬 필요가 있음을 확인하였다.

감사의 글

본 연구는 세라믹기술원 정책연구사업과 WPM 사업(사업번호: 10037913)의 지원으로 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

References

- [1] K.-S. Cho, S.-H. Yoon, H. Chung, S.-H. Chae, K.-Y. Lim, Y.-W. Kim and S.-H. Park, "SiC materials techniques for semiconductor production line", *Ceramist* 10 (2007) 33.
- [2] Y.-H. Yun and S.C. Choi, "Fabrication of SiC covered graphite by chemical vapor reaction method (II)", *J. Kor. Ceram. Soc.* 36 (1999) 21.
- [3] G. Chichignoud, M. Ucar-Morais, M. Pons and E. Blanquet, "Chlorinated silicon carbide CVD revisited for polycrystalline bulk growth", *Surf. Coat. Technol.* 201 (2007) 8888.
- [4] J.-H. Lee, J.-B. Yoo and S.-I. Bae, "Susceptor design by numerical analysis in horizontal CVD reactor", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 15 (2005) 135.
- [5] H.-Y. Shin, S.-M. Hogn, J.-W. Yoon, D.-Y. Jeong and J.-I. Im, "Numerical analysis of CZ growth process for sapphire crystal of 300 mm length", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 23 (2013) 272.
- [6] J.-H. Kim, Y.-H. Park and Y.-C. Lee, "Analysis of melt flows and remelting phenomena through numerical simulations during the kyropoulos sapphire single crystal growth", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 23 (2013) 129.
- [7] Y. Yan and Z. Weigang, "Kinetic and microstructure of SiC deposited from $\text{SiCl}_4\text{-CH}_4\text{-H}_2$ ", *Chin. J. Chem. Eng.* 17 (2009) 419.
- [8] J.-W. Kim, Y.-S. Han, K. Choi and J.-H. Lee, "Application of CFD simulation in SiC-CVD process", *J. Comput. Fluids Eng.* 18 (2013) 67.
- [9] R.B. Bird, W.E. Stewart and E.N. Lightfoot, "Transport Phenomena", 2nd ed. (John Wiley & Sons, 2007).
- [10] J.-W. Seo and K. Choi, "Application of computational fluid dynamic simulation to SiC CVD reactor for mass production", *J. Kor. Ceram. Soc.* 50 (2013) 533.