

Understanding of the effect of charge size to temperature profile in the Czochralski method

Sungsun Baik, Sejin Kwon and Kwanghun Kim[†]

R&D Center, Woongjin Energy, Daejeon 34012, Korea

(Received July 18, 2018)

(Revised July 31, 2018)

(Accepted August 6, 2018)

Abstract Solar energy has attracted big attentions as one of clean and unlimited renewable energy. Solar energy is transformed to electrical energy by solar cells which are comprised of multi-silicon wafer or mono-silicon wafer. Mono-silicon wafers are fabricated from the Czochralski method. In order to decrease fabrication cost, increasing a poly-silicon charge size in one quartz crucible has been developed very much. When we increase a charge size, the temperature control of a Czochralski equipment becomes more difficult due to a strong melt convection. In this study, we simulated a Czochralski equipment temperature at 20 inch and 24 inch in quartz crucible diameter and various charge sizes (90 kg, 120 kg, 150 kg, 200 kg, 250 kg). The simulated temperature profiles are compared with real temperature profiles and analyzed. It turns out that the simulated temperature profiles and real temperature profiles are in good agreement. We can use a simulated profile for the optimization of real temperature profile in the case of increasing charge sizes.

Key words Czochralski method, Temperature profile, Silicon single crystal ingot, Charge size, Solar industry

초크랄스키법에서 온도 프로파일에 대한 충전사이즈의 효과에 대한 이해

백성선, 권세진, 김광훈[†]

웅진에너지 연구소, 대전, 34012

(2018년 7월 18일 접수)

(2018년 7월 31일 심사완료)

(2018년 8월 6일 게재확정)

요약 태양광 에너지는 깨끗하며 무한한 재생에너지의 한가지로 많은 관심을 받아왔다. 태양광 에너지는 단결정 실리콘 웨이퍼 혹은 단결정 실리콘 웨이퍼로 구성된 솔라셀에 의해서 전기에너지로 전환된다. 제조원가를 낮추기 위하여 한 개의 석영 도가니에 폴리실리콘의 충전 크기를 증가시키는 연구가 많이 개발되어 왔다. 충전 크기를 증가시키면, 초크랄스키 공정장비의 온도제어가 강한 멜트 대류 때문에 힘들어진다. 본 연구에서는 20 inch와 24 inch 석영도가니와 90 Kg, 120 Kg, 150 Kg, 200 Kg, 250 Kg의 다양한 폴리실리콘 충전 크기에서 시뮬레이션을 통해 장비 온도 프로파일을 얻었으며, 실제값과 비교하고 분석하였다. 시뮬레이션 온도 프로파일과 실제 온도프로파일이 잘 일치하였으며, 이로써 충전 사이즈가 증가할 경우, 실제온도 프로파일 최적화를 위해 시뮬레이션을 사용할 수 있게 되었다.

1. 서론

Czochralski 방법은 단결정 잉곳을 생산하는 매우 대중적인 일반적인 방법이다. Si 재료는 반도체와 태양전지 분야에서 매우 중요한 재료이다. Si 단결정 잉곳은 Czochralski 방법으로 진공챔버 안에서 성장된다. Si 단결정 잉곳은 여러개의 원형기둥모양의 브릭으로 절단된

후, 사각형기둥 모양으로 절단된다. 사각형기둥 모양의 브릭은 다이아몬드 와이어 쏘잉기계로 wafer로 절단된 뒤, 솔라셀 제작에 주원료로 사용된다.

최근 태양광 산업은 공급과잉으로 인한 판가하락으로 인하여 매우 힘든 시기를 겪고 있다[1-3]. 많은 제조업체들이 시장에서 사라졌다. 생존하기 위해서는 원가를 더욱 저감해야 한다. 단결정 잉곳 성장 수율을 향상시키는 것이 가장 좋은 원가 저감 방법이다. Czochralski 방법의 Si 단결정 잉곳 성장 수율은 단결정구조상실의 비율에 반비례한다. 잉곳 성장로 안의 그라파이트 부품과 단

[†]Corresponding author

E-mail: huny2975@naver.com, khkim@woongjinenenergy.com

열재의 온도를 제어하는 것은 단결정구조상실을 억제하는데 매우 중요하다[4-6]. 특히 Czochralski 방법은 배치 공정으로, 잉곳 성장 길이의 함수로 그래파이트 부품과 단열재 온도 설정은 매우 복잡하다. 진공챔버 성장로 안에서 Si 단결정 성장시, Si 고체 잉곳의 길이와 상부 그래파이트 부품의 상대적 위치와 Si 액체를 담고 있는 석영도가니와 하부 그래파이트 부품의 상대적 위치가 계속 변하게 된다.

시뮬레이션은 진공챔버 성장로 안의 그래파이트 부품의 온도를 예측하는 데 매우 유용한 도구이다[7]. 시뮬레이션을 통해 실제 실험에 비해서, 시간과 돈과 같은 자원을 절약할 수 있다. 또한 한 인자를 어떤 방향으로 변경했을 때, 반응값이 어느 방향으로 나타나는지 예측하는데 유용하다. 본 연구에서는 시뮬레이션을 통하여, Si 단결정 잉곳 길이 함수에 따른 그래파이트 부품의 온도 프로파일을 확인하였고, 충전 사이즈와 석영도가니의 크기를 변경하여 시뮬레이션 하였으며, 실제 값과 비교하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서 STR 그룹의 상용 소프트웨어인 CGSim으로 시뮬레이션을 진행하였다. CGSim은 Si 단결정 잉곳 진공챔버 성장로 안의 Global 시뮬레이션을 할 수 있는 소프트웨어이다[8]. Czochralski 공정의 Global 시뮬레이션은 대류, 전도, 복사를 통한 성장로 내부의 그래파이트 히터 및 부품, Si 액체, Si 고체 단결정 잉곳사이의 모든 열전달을 계산한다. 시뮬레이션에서는 성장로, 그래파이트 부품, 단결정 잉곳 등의 실제 길이를 사용하였다. 각 재료의 물성중 주요 부품의 물리적 상수값은 Table 1에 표기하였다. 모든 부품과 Si 액체와 고체의 시뮬레이션 도면은 사각형과 삼각형의 작은 그리드와 메쉬로 분할하였다[9]. CGSim에서 제공하는 지배방정식, 초기 조건, 경계조건을 그대로 사용하였다. Si 액체 대류와 Ar 개스 대류를 통한 운동량전달도 CGSim에서 기본적으로 제공되는 것을 사용하였다.

Table 2에 시뮬레이션 조건을 표기하였다. 20 인치와 24 인치 두 가지 크기의 석영도가니를 사용하였다. 폴리

Table 2
A simulation condition

Quartz crucible diameter	Hot zone	Poly silicon charge size [Kg]		
20 inch	20 inch hot zone	90	120	150
24 inch	24 inch hot zone	150	200	250

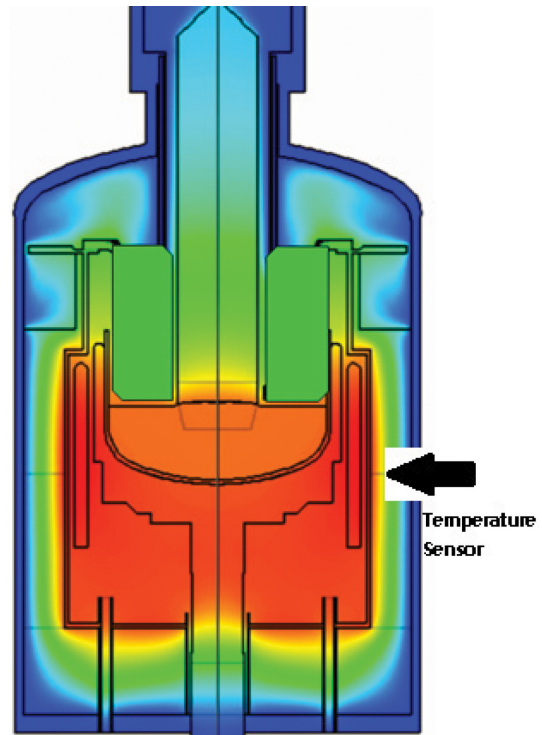


Fig. 1. The position of temperature sensor in simulated temperature contour map of grower.

실리콘 충전 사이즈는 20 인치 석영도가니에서는 90 Kg, 120 Kg, 150 Kg을 사용하였고, 24 인치 석영도가니에서는 150 Kg, 200 Kg, 250 Kg를 사용하였다. Si 단결정 잉곳의 직경은 8.3 인치이며, 타겟 인상 속도는 1~1.3 mm/min이다. 석영도가니 회전속도는 반시계방향으로 5~10 rpm이며, Si 잉곳의 회전속도는 시계방향으로 10~15 rpm이다. Ar의 유량은 20~50 lpm이며, 성장로 내부 압력은 20~40 torr이다. Melt Level(히터 상단부터 실리콘 액면까지의 거리)은 100~140 mm이며, Melt Gap(Heat shield 하단부터 실리콘 액면까지의 거리)는 20~40 mm이다.

Table 1
Physical properties for simulation

Item	Conductivity [W/m/K]	Specific heat [J/kg/K]	Emissivity
Graphite	6.5+85.5exp(-0.0009T)	2416.6T/(258.6+T)	0.7
Insulator	0.15	516+0.634T	0.8
Quartz	0.56+0.049exp(0.002T)	753.9	0.85
Si (solid)	23.8+314.4exp(-0.0036T)	744.7	0.9

각 Simulation 조건에서, Si 단결정 잉곳 길이를 100 mm 구간으로 변경하면서 Simulation을 진행하였다. 각 조건에서 Simulation 종료 후, 실제 성장로에 부착된 광학식 온도센서와 같은 지점(Fig. 1에서 오른쪽 측면 검은색 화살표 지점)에서의 Simulation 온도를 확인하였다. 20 인치 석영도가니에 폴리실리콘 120 Kg을 충전하고 실제 성장로에서 Si 단결정 잉곳을 성장하여, 1분마다 광학식 온도센서에서 실제 온도를 측정하였다. 또한 24 인치 석영도가니에 폴리실리콘 200 Kg을 충전하고 같은 방법으로 실제 온도를 측정하였다. 시뮬레이션에서 얻은 온도와 실제 측정한 온도를 비교 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 Si 단결정 잉곳 바디 길이에 따른 24 인치 온도 프로파일을 보여주고 있다. 최종 잉곳 바디 길이는 폴리실리콘 충전 사이즈에 비례하여 증가한다. 150 Kg는 1600 mm, 200 Kg는 2100 mm, 250 Kg는 2800 mm이다. 3개의 온도 프로파일 모두 처음에 감소하였다가 다시 증가하는 비슷한 트렌드를 보이고 있다. 시작 온도

는 약 1865 K으로 유사한 값을 보여주는 반면에, 제일 낮은 온도를 보이는 잉곳 바디 위치는 150 Kg에서 400 mm, 200 Kg에서 700 mm, 250 Kg에서 1300 mm로 다르게 나타난다.

Fig. 3은 Fig. 2의 두 곡선(24 inch-200 Kg와 24 inch-250 Kg)을 각각 600 mm와 1200 mm 만큼 왼쪽으로 이동시킨 그래프이다. 놀랍게도 3개의 곡선은 거의 일치한다. 이것은 잉곳을 성장하기 위해 필요한 온도가 잉곳의 바디 길이 보다는 석영도가니에 남아 있는 잔류 액체 크기에 의존한다는 것을 의미한다. 또한 이는 Si 고체-액체 계면의 온도 분포는 고체 단결정 잉곳의 열 흐름보다는 액체의 열 흐름에 더 영향을 받는다는 것을 의미한다.

Fig. 4는 동일한 잔류 액체 크기에서 잉곳 길이가 200 mm, 800 mm, 1400 mm로 다른 경우의 석영도가니와 잉곳과의 상대적 개략도이다. Fig. 3에 따르면, shift된 3개의 곡선의 온도는 유사하다. Czochralski 법에서 잔류 액체의 크기는 잉곳이 성장함에 따라 감소한다. 그러나, Continuous Czochralski 법에서는 잔류 액체의 크기는 Fig. 4와 같이 잉곳이 성장하더라도 변하지 않는다. 이것을 통해, Continuous Czochralski 법의 온도 프로파일은 일반 Czochralski 법과 달리 수평한 직선형태일 것으로

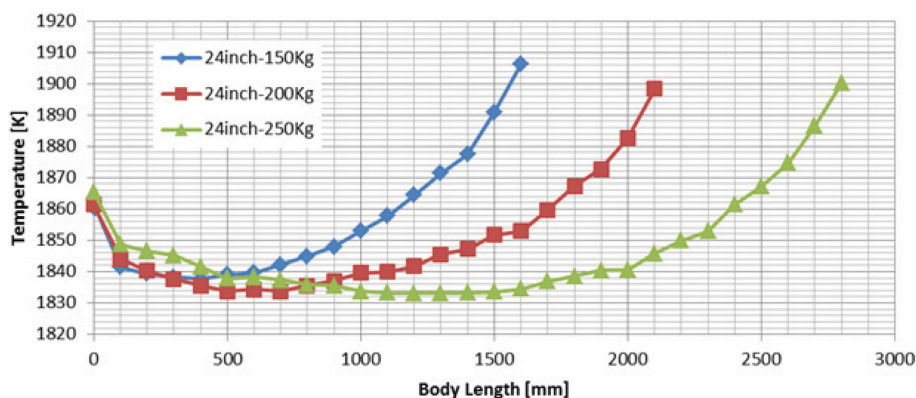


Fig. 2. The temperature profiles as a function of the ingot body length in 24-inch quartz crucible.

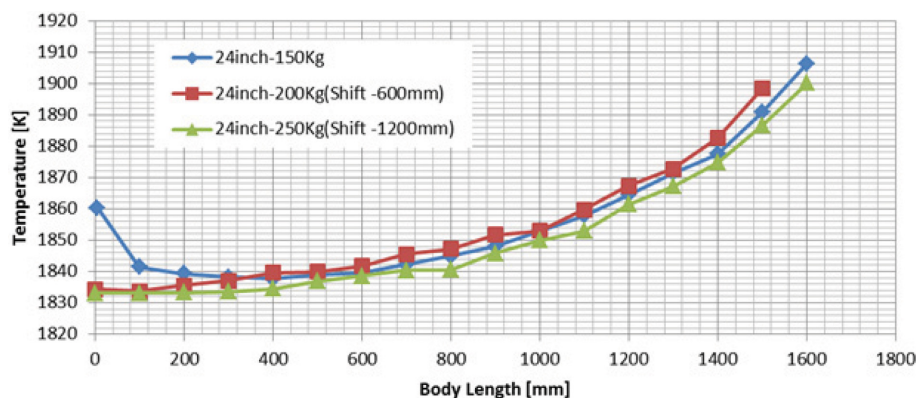


Fig. 3. The shifted temperature profiles as a function of the ingot body length in 24-inch quartz crucible.

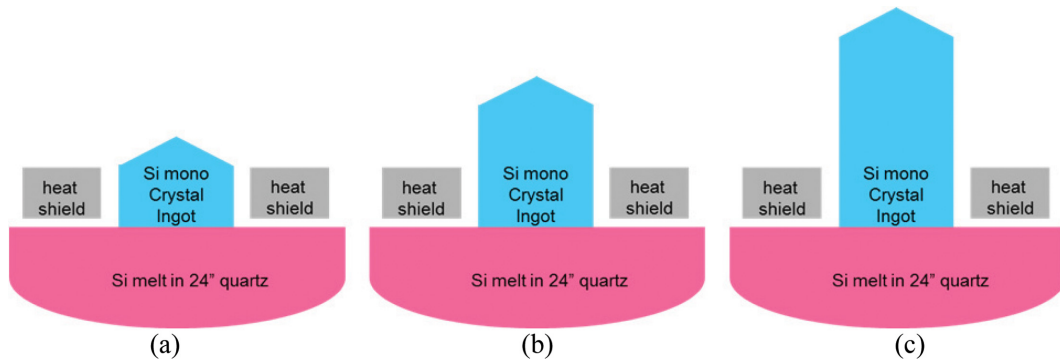


Fig. 4. The schematic diagrams of quartz crucibles and ingots with different lengths and same remaining melt size: (a) 200 mm, (b) 800 mm, (c) 1400 mm.

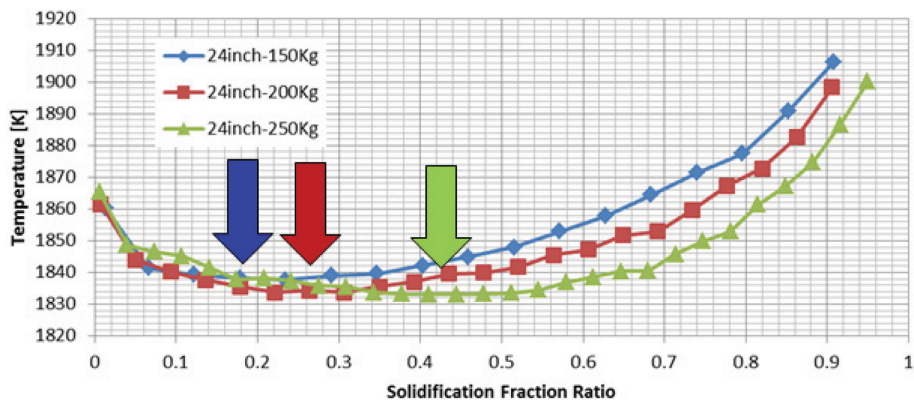


Fig. 5. 24 inch temperature profile as a function of solidification fraction ratio.

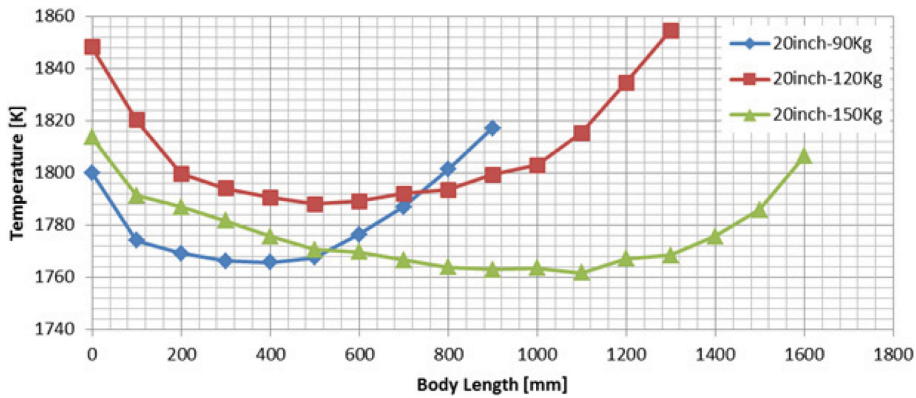


Fig. 6. The temperature profiles as a function of the ingot body length in 20-inch quartz crucible.

유추할 수 있다.

Fig. 5는 Fig. 2의 24 인치의 온도 프로파일을 고화분율에 따라 재계산하여 그린 것이다. 고화분율은 어떤 길이까지 성장된 잉곳 무게를 최초 폴리실리콘 충전 사이즈로 나누어 계산하고, 그 값은 1을 넘지 않는다. 고화분율에 대한 그래프로 변환시에 온도가 최소가 되는 고화분율 값이 150 Kg에서는 0.18, 200 Kg에서는 0.26, 250 Kg에서는 0.42로 폴리실리콘 충전 사이즈가 늘어날 수록 증가하는 경향을 보였다.

Fig. 6은 20 인치 석영도가니에서 잉곳 길이에 따른 온도 프로파일을 보여주고 있다. 세 조건 모두 24 인치 석영도가니와 마찬가지로 초기에 온도가 감소하였다가, 다시 증가하는 경향을 보인다. Fig. 7에서는 Fig. 6의 120 Kg와 150 Kg 그래프를 각각 400 mm, 700 mm 왼쪽으로 이동하였다. 세 조건의 마지막 Body 후반부 구간의 기울기는 유사였다.

Fig. 8은 Fig. 6의 그래프를 재계산하여, 20 인치 석영도가니에서 고화분율에 따른 온도 프로파일을 보여주고

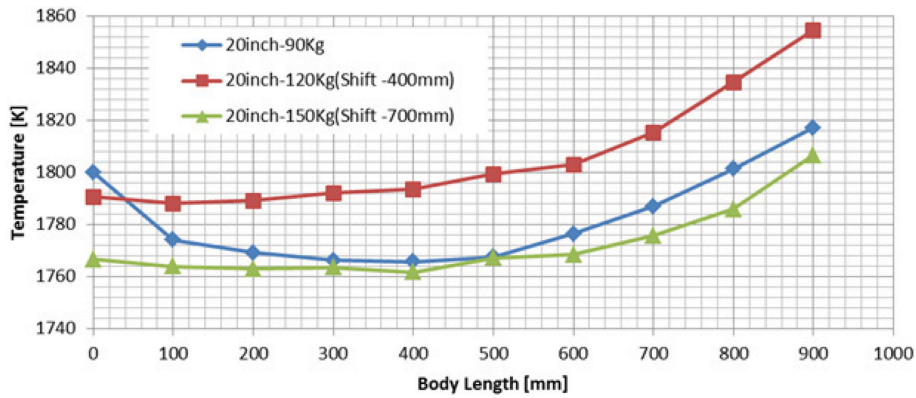


Fig. 7. The shifted temperature profiles as a function of the ingot body length in 20-inch quartz crucible.

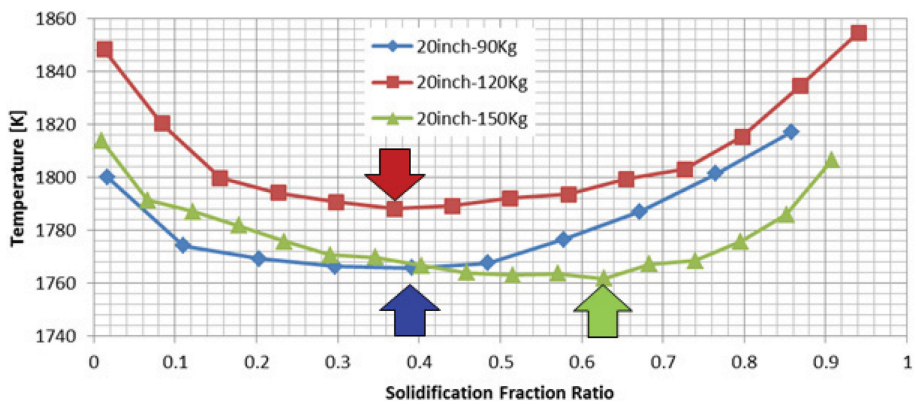


Fig. 8. 20 inch temperature profile as a function of solidification fraction ratio.

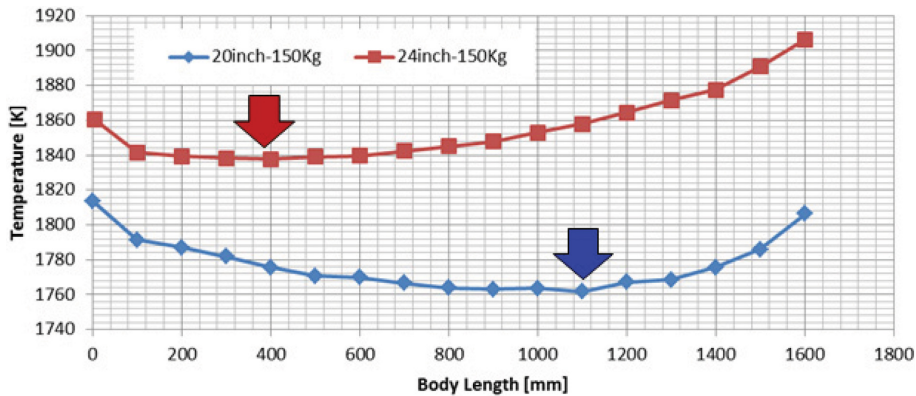


Fig. 9. Comparison of temperature profile between 20 inch and 24 inch at 150 Kg.

있다. 세 조건 모두 24 인치 석영도가니와 마찬가지로 초기에 온도가 감소하였다가, 다시 증가하는 경향을 보인다. 고화분율에 대한 그래프로 변환시에 온도가 최소화 되는 고화분율 값이 90 Kg에서는 0.39, 120 Kg에서는 0.37, 150 Kg에서는 0.62로, 폴리실리콘 충전 사이즈가 90 Kg 과 120 Kg은 유사하나, 150 Kg은 크게 증가하는 경향을 보였다. 또한 24 인치 석영도가니의 경우보다는 최소 온도 고화분율 값이 더 증가하였다.

Fig. 9는 150 Kg에서 20 인치와 24 인치의 온도 프로 파일을 비교하여 보여주고 있다. 두 조건 모두 초기에 온도가 감소하였다가, 다시 증가하는 경향을 보인다. 그러나 최소 온도가 되는 길이는 20 인치 1100 mm와 24 인치 400 mm로 큰 차이를 보인다. 또한 바디 길이 0 mm에서의 온도와 최소 온도와의 차이 또한 20 인치는 55 K, 24 인치는 20 K으로 다르다. 또한 바디 최종 길이 1600 mm에서의 온도와 최소 온도와의 차이 또한 20 인치

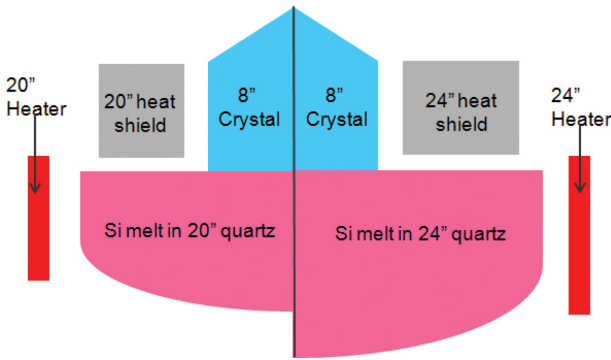


Fig. 10. Schematic diagram of relative position between Quartz crucibles and heater (Left side is 20 inch and Right side is 24 inch).

는 50 K, 24 인치는 65 K으로 다르다.

Fig. 10은 20 인치와 24 인치의 잉곳, 석영도가니, 히터와의 개략도이다. 왼쪽은 20 인치, 오른쪽은 24 인치를 나타낸다. (1) 히터의 상대적 길이(24 인치 히터 높이는 20 인치 히터 높이보다 50 mm 큼), (2) 히터와 석영도가니의 상대적 위치, (3) heat shield의 폭의 상대적 길이, (4) 석영도가니의 직경과 같이 4가지 다른 점을 찾아 볼 수 있다. 앞의 결과들과 Fig. 10을 통해 다음과 같은 가설들을 세울 수 있다.

(1) 히터가 석영도가니에 비해 상대적으로 높이 있는 경우, 최초 온도하락 구간의 폭이 더 크다.

(2) 온도가 상승하는 구간은 잔류 액체 양의 감소에 따른 열용량 감소를 보상해 주고자 일어난다.

(3) 잉곳 바디 길이는 잔류 액체의 양보다는 고액체면의 온도에 상대적으로 큰 영향을 주지 않는다.

Fig. 11은 20 인치 120 Kg와 24 인치 200 Kg의 Simulation 온도 프로파일과 실제 온도 프로파일을 비교한 그래프이다. 20 인치는 잘 일치하고 있으나, 24 인치는 바디길이 초반부는 불일치하고, 바디길이 후반부는 경향이 잘 일치하고 있다. 24 인치 초반부의 차이는 실제 잉곳 성장 인상속도와 시뮬레이션 속도와의 차이에서

발생한 것으로 추정된다.

4. 요약 및 결론

본 연구에서는 20 인치와 24 인치 석영도가니와 90 Kg, 120 Kg, 150 Kg, 200 Kg, 250 Kg의 다양한 폴리실리콘 충전 크기에서 시뮬레이션을 진행하였다. 20 인치와 24 인치 모두 잉곳 바디 길이 초반부에는 급격히 감소했다가 점점 증가하는 경향을 보였으며, 충전 사이즈가 증가할수록 최저온도 지점의 고화분율값은 증가하는 경향을 보였다. 20 인치와 24 인치 모두 충전 사이즈 증가에 비례하여 일정길이 만큼 온도 프로파일을 왼쪽으로 이동하면, 증가하는 온도기울기는 유사한 경향을 보였다. 20 인치와 24 인치의 히터와 잔류액체의 상대적 위치 차이로 20 인치는 상대적으로 초기에 온도가 많이 감소하고 적게 온도가 상승하고, 24 인치는 초기에 적게 감소하고 상대적으로 온도가 많이 상승하는 경향을 보였다. 실제 온도 프로파일과 비교결과 24 인치의 초반 온도감소부분만을 제외하고 경향이 잘 일치 하였다. 이로써 충전 사이즈가 증가할 경우, 실제온도 프로파일 최적화를 위해 시뮬레이션을 사용할 수 있는 가능성을 확인하게 되었다.

감사의 글

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다 (No. 20173010013070).

References

[1] M. Hosenuzzaman, N.A. Rahim, J. Selvaraj, M. Hasa-

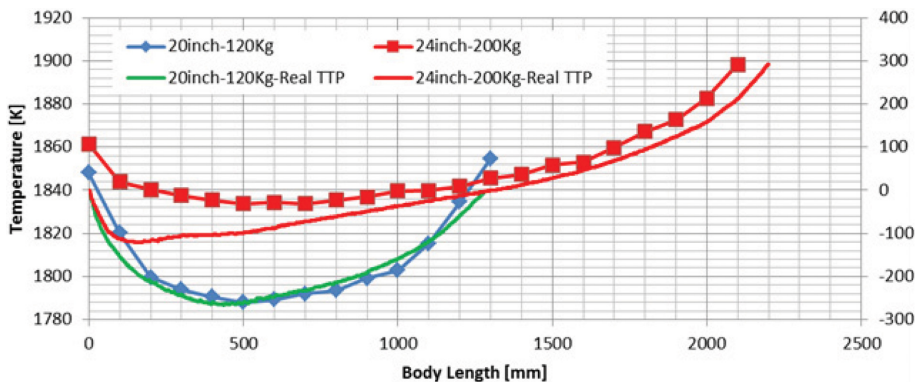


Fig. 11. Comparison of temperature profile between simulation and experimental data.

- nuzzaman, A.B.M.A. Malek and A. Nahar, "Global prospects, progress, policies, and environmental impact of solar photovoltaic power generation", *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 41 (2015) 284.
- [2] A.K. Pandey, V.V. Tyagi, J.S.L. Selvaraj, N.A. Rahim and S.K. Tyagi, "Recent advances in solar photovoltaic systems for emerging trends and advanced applications", *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 53 (2016) 859.
- [3] S.D. Stranks, P.K. Nayak, W. Zhang, T. Stergiopoulos and H.J. Snaith, "Formation of thin films of organic-inorganic perovskites for high-efficiency solar cells", *Angewandte Minireviews* 54 (2015) 3240.
- [4] T.C. Chen, H.C. Wu and C.I. Wang, "The effect of interface shape on anisotropic thermal stress of bulk single crystal during Czochralski growth", *J. Cryst. Growth* 173 (1997) 367.
- [5] J. Friedrich, L. Stockmeier and G. Muller, "Constitutional supercooling in Czochralski growth of heavily doped silicon crystals", *Acta Physica Polonica A* 124 (2013) 219.
- [6] K.H. Kim and S.S. Baik, "Optimization of pulling speed for decreasing thermal stress in different quartz crucible size with Czochralski method", *42nd IEEE PVSC* 1 (2015) 1.
- [7] V.V. Kalaev, "Combined effect of DC magnetic fields and free surface stresses on the melt flow and crystallization front formation during 400mm diameter Si Cz crystal growth", *J. Cryst. Growth* 303 (2007) 203.
- [8] V.V. Kalaev, A. Sattler and L. Kandinski, "Crystal twisting in Cz Si growth", *J. Cryst. Growth* 413 (2015) 12.
- [9] B. Zhou, W. Chen, Z. Li, R. Yue, G. Liu and X. Huang, "Reduction of oxygen concentration by heater design during Czochralski Si growth", *J. Cryst. Growth* 483 (2018) 164.