

자동직경제어 Czochralski 성장장치의 제작

한재용, 박성수, 이성국, 마동준, 김용훈, 이상학

삼성종합기술원, 수원, 440-600

Automatic diameter control system for Czochralski growth

J.Y. Han, S.S. Park, S.K. Lee, D.J. Ma, Y.H. Kim and S.H. Lee

Samsung Advanced Institute of Technology, Suwon 440-660, Korea

요 약 무게 측정에 의한 자동 직경 제어 방식의 Czochralski 단결정 성장 장치를 제작하였다. 성장로의 몸체와 hot zone을 자체 설계, 제작하였으며, computer에 의하여 전자저울과 유도가열장치를 자동 제어하므로써 가열 공정에서부터 냉각 공정까지의 모든 과정을 자동화시킬 수 있는 program을 개발하였다. 제작된 성장장치를 사용하여 LiNbO₃ 단결정을 성장시켜 성장 장치의 성능을 평가하였다.

Abstract We developed a computer controlled Czochralski puller which automated entire crystal growing processes. Crystal weighing technique was employed for an automatic diameter control. The performance of the system was evaluated by the growth of LiNbO₃ single crystals.

1. 서 론

Czochralski 방법에 의하여 단결정을 수동 작업으로 성장시킬 경우 결정 성장은 숙련자의 경험에 근거하여 이루어진다. 그러나 이러한 수동 작업에 의한 결정 성장은 결정이 성장되는 동안의 불충분한 시야조건, 성장로 내의 열적인 조건 변화, 작업자의 감각에 의

존한 부적절한 작동, 장시간의 작업에 의한 피로 등에 기인하여 품질이 우수한 단결정을 재현성있게 성장시킬 수 없다. 특히 산화물 단결정은 결정 성장 속도가 느리고 열전도도가 낮아 응답 시간(response time)이 느리므로 용융액의 온도 제어만으로는 정밀한 직경 제어가 불가능하다. 따라서 품질이 우수한 단결정을 재현성있게 성장시키기 위해서는

자동 직경 제어 방식이 요구된다.

자동 직경 제어 방식은 결정 성장이 진행되는 동안 결정 성장 상태를 입력된 data에 의해 계산된 기준치와 서로 비교하여 그 차이를 발열 장치에 feed back시킴으로써 이루어진다. 자동 직경 제어 방식에는 광학적 방법[1-3]과 무게측정 방법[4-9] 등이 있다. 광학적 방법에 의한 자동 직경 제어 방법은 광학기구, X-ray, camera 등을 이용하여 결정의 직경을 측정하는 방법으로 Si등과 같은 단결정의 성장에 국한적으로 이용된다. 무게측정에 의한 자동 직경 제어 방법은 다양한 크기와 여러 종류의 단결정 성장에 널리 이용될 수 있는 방법으로 성장되는 결정의 무게를 측정하여 결정의 직경을 제어하는 방법이다. 무게측정에 의한 자동 직경 제어 방법은 소형 성장로의 경우 load cell을 성장로의 하부에 장치하며, 대형 성장로의 경우에는 load cell을 성장로의 상부에 장치한다. 성장로의 하부에 load cell을 설치할 경우에는 잡음이 적게 발생하며 구조가 간단하나 대형의 결정을 성장시킬 경우 도가니, 원료, 도가니 지지대 등의 무게가 증가하여 load cell의 감도가 떨어지므로, 대형 성장로의 경우에는 성장로의 상부에 load cell을 장치하여 결정의 무게만을 측정하도록 하는 방식을 사용하고 있다.

본 실험에서는 무게측정에 의한 자동 직경 제어 방식의 Czochralski 성장 장치를 제작하기 위하여 성장로 몸체 및 hot zone을 설계, 제작하였으며, computer에 의하여 전자 저울과 유도 가열 장치(middle frequency generator)를 자동 제어하고, 입력된 data에 의하여 결정 성장이 진행될 수 있도록 program을 개발하였다. 제작된 성장 장치로 LiNbO_3 단결정을 성장시켜 단결정 성장로의 동작 특성에 관한 실험을 수행하였다.

2. Automatic Diameter Control(ADC)의 원리

본 고에서 기술한 ADC의 원리는 다음과 같은 조건을 가정하였다.

- 조건 1. 용융액의 증발에 의한 무게 감소 무시
- 조건 2. 도가니는 원통형으로 가정
- 조건 3. 고액체면의 형태는 원형이며 편평함
- 조건 4. 결정의 인상 속도는 일정함
- 조건 5. 표면장력 무시[10]

조건 6. 유도 가열 효과에 의한 무게 변화 무시

이와 같은 조건은 실제의 결정 성장에서 일반적으로 미세한 효과를 나타내지만, 특수한 경우에는 무시될 수 없는 것들도 있다. 따라서 단결정의 종류와 성장 조건에 따라 각 조건의 영향을 감안하여야 한다.

ADC의 원리는 단위시간당 성장되어야 할

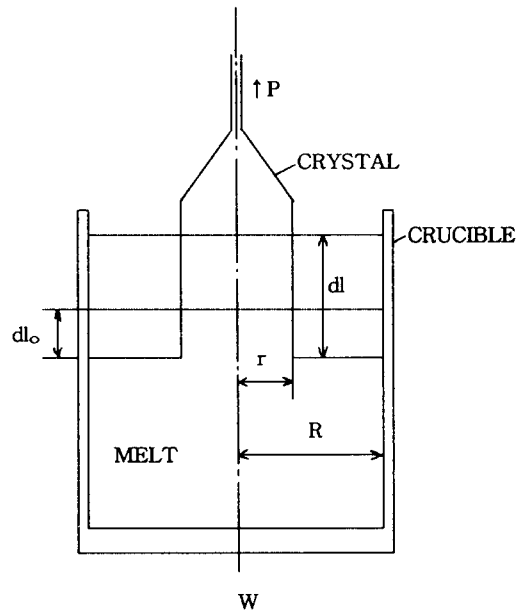


Fig. 1. The relation between crystal and melt.

결정의 무게를 계산한 값과 단위시간당 성장되는 결정의 실제 무게를 서로 비교하여 오차를 구하고, 그 오차에 의하여 가열 장치를 제어하는 것이다.

Fig. 1에서와 같이 결정 성장시에 도가니의 반경(R), 결정의 직경(r), 결정의 고체밀도 ρ_s , 액체밀도 ρ_L , 결정의 인상속도(P), 용액의 하강속도(H), 결정의 성장속도(G), 결정의 무게(W) 사이에는 다음과 같은 관계를 갖는다.

단위시간당 성장되는 결정의 길이를 dl이라 하고 단위시간당 하강하는 용액의 하강거리를 dl_0 라 하면

$$\rho_L \pi R^2 dl_0 = \rho_s \pi r^2 dl \quad (1)$$

$$dl/dt = G = P + H \quad (2)$$

$$dl_0/dt = H \quad (3)$$

이며, 단위시간당 성장되는 결정의 무게(dW/dt)는

$$dW/dt = \rho_s \pi r^2 dl/dt = \rho_s \pi r^2 G \quad (4)$$

가 된다. 따라서 (1), (2), (3)식으로부터

$$\rho_L \pi R^2 H = \rho_s \pi r^2 (P + H) \quad (5)$$

가 된다. 또한 $H = G - P$ 를 (5)식에 대입하면 결정 성장 속도 G는

$$G = \{(\rho_s/\rho_L)(r/R)^2 + 1\} P \quad (6)$$

이므로, (4)식과 (6)식을 이용하여 직경을 제어할 수 있다.

한편 결정의 어깨부분과 몸통부분의 자동 직경 제어를 위하여 각각 다음과 같은 수식을 사용할 수 있다.

$$r = A t^2 + B t + c \text{ for } 0 < t \leq t_s \quad (7)$$

$$r = K \text{ (constant) for } t_s < t \quad (8)$$

여기서 A, B, C는 결정의 형상을 결정하는 상수이며 t_s 는 결정의 어깨부분을 성장시킬 동안의 시간을 나타낸다. (7)식은 어깨가 2차곡선의 형태를, (8)식은 일정한 직경을 지닌 원통형태로 결정이 성장되도록 한다.

결정의 어깨가 성장되는 동안, (6)식과 (7)식으로 부터 임의의 시간 t에서의 결정의 성장속도를 알 수 있으며 이 때의 성장속도를 식(4)에 대입하면 임의의 시간 t에서의 dW/dt 를 알 수 있다. 따라서 임의의 시간 t에서 load cell로 부터 측정된 단위시간당 성장된 결정무게와 (4)식으로 부터 계산된 값을 서로 비교하여 그 차이값에 의하여 발열 장치의 출력을 조절하면 원하는 형태로 결정의 직경을 제어할 수 있게 된다. 결정의 몸통이 성장되는 동안은, 결정의 직경이 일정하므로 단위시간당 성장되어야 할 결정의 무게도 일정한 값을 갖는다. 따라서 load cell로 부터 측정된 단위시간당 성장된 결정의 무게와 일정한 값의 dW/dt 를 서로 비교하여 발열 장치의 출력을 제어하면 일정한 직경의 결정이 성장된다.

3. 결정성장 장치의 제작

본 실험에서 제작된 Czochralski 성장 장치는 Fig. 2에서와 같이 결정이 성장되는 hot zone부분, 결정을 회전 및 인상시키는 부분, 도가니를 가열시켜주는 Middle Frequency (MF) generator, 도가니와 용융액의 무게를 측정하는 전자저울, MF generator를 조절하기 위한 voltage source, 자동 직경 제어를 위한 soft ware 및 computer로 구성하였

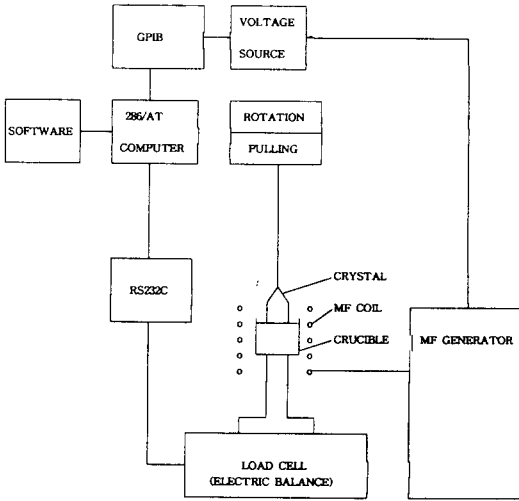


Fig. 2. Schematic diagram of automatic diameter control system.

다.

성장로 hot zone의 구조는 Fig. 3과 같다. Fig. 3에서와 같이 전자 저울을 도가니 하부에 장치하였으며, 도가니가 주변 단열재와 접촉되지 않도록 제작하여 도가니와 원료이외의 무게를 줄이므로써 저울의 감도를 높였다. 단열재는 상, 중, 하의 3부분으로 구성하였다. 상부는 afterheater의 역할, 중앙부와 하부는 도가니 주변을 단열하도록 하였다. 도가니 주변은 ZrO_2 tube로 제작하였고 외부는 Al_2O_3 tube를 사용하였으며 그 사이에는 ZrO_2 bubble을 채웠다. 도가니의 재질은 필요에 따라 Pt, Ir 등을 사용할 수 있으며 Ir을 사용할 경우에는 불활성 가스로 분위기를 조성할 수 있게 하였다.

결정인상장치는 pulse motor(ORIENTAL MOTOR사 model : PH569-B 5-phase), CHUO SEIKI사의 pulse motor driver pack (model : SD-P), program controller(model : CAT-I)와 vertical stage로 구성하였다.

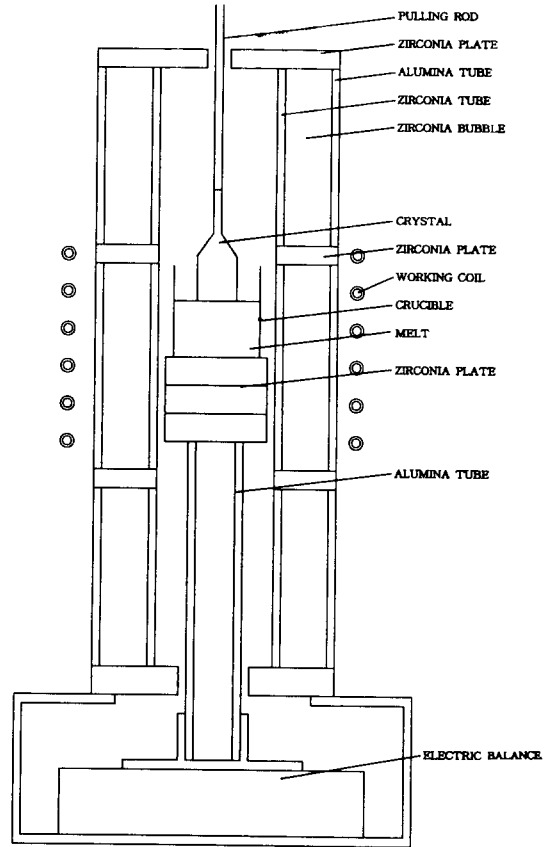


Fig. 3. Hot zone of Czochralski puller.

이동속도는 최저 0.1 mm/hr, 최고 100 mm/min이다. 결정회전 장치는 속도조절이 가능한 AC motor와 controller(PANASONIC사 model : MUX606GY)로 구성하였으며, 회전속도는 2~200 rpm의 범위에서 회전속도를 조절할 수 있게 하였다. 도가니를 가열시키는 역할을 하는 MF generator는 INDUC-TOR-THERM 사 (model : VIP POWER TRACK 15-96)에서 제작된 것으로 주파수 10 kHz, 최대출력 15 kW이다. 결정의 무게를 측정하기 위한 load cell은 일반적인 전자저울(SARTORIUS사 model : LC2000L)을 사용하였으며 RS232 port를 통하여 comput-

er와 연결하였다. 전자저울의 분해능은 0 ~ 2.5 kg의 범위에서 0.01 g의 정밀도를 갖는다. 자동 직경 제어 system에서 voltage source의 역할은 computer로 부터 받은 명령을 전압으로 변환시켜 MF generator의 power를 제어하는 것으로 0 ~ 5 volt의 범위에서 0.5 mV의 분해능을 지닌 KEITHLEY 사(model : 230)의 voltage source를 사용하였다. computer와 voltage source와의 통신에는 GPIB를 사용하였다. 자동 직경 제어용 program을 실행시키기 위한 computer는 AT급 286 computer를 사용하였다. 자동 직경 제어용 program은 QBASIC 언어를 사용하여 data 입력, 가열, seeding, 수동 성장, 자동 성장, 냉각의 단계로 구성되어 있으며 결정 성장시의 data를 file로 저장할 수 있도록 하였다.

4. 단결정 성장 장치의 특성 및 논의

제작된 Czochralski 성장장치는 Fig. 4와 같으며 결정 성장 장치의 성능을 평가하기 위하여 직경 30 mm, 길이 60 ~ 80 mm의 LiNbO₃ 단결정을 성장시켰다. 직경과 높이가

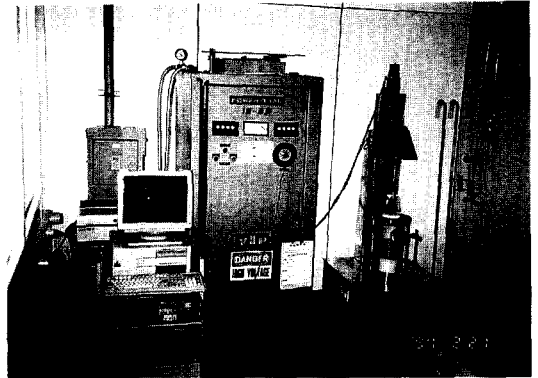


Fig. 4. ADC system for Czochralski growth.

각각 60 mm인 백금도가니에 550g의 LiNbO₃ 분말을 장입하고, Table 1과 같은 결정성장 data를 computer에 입력시켰다. 가열 단계에서 원료를 용융시키고 seeding 단계에서는 유도 가열 장치의 출력을 조절하여 적절한 seeding point를 찾았다. 결정 성장 단계에서는 결정의 목 부분에서 부터 어깨 부분, 몸통 부분까지를 자동 직경 제어하며 결정을 성장시켰다. 결정 성장이 완료된 후, 성장된 결정을 용융액으로 부터 분리시키고 서서히 냉각시켰다.

결정 성장을 위하여 입력한 data중에서 propotional value와 interval time은 결정의

Table 1

Data for growth of LiNbO₃ single crystals with ADC system

Pt crucible	60 mm (D), 60 mm (H)	Crystal diameter	30 mm
Raw material	550 g	Crystal length	80 mm
Heating voltage	1.12 V	Seed diameter	4 mm
Voltage limit	1.13 V	Shoulder length	25 mm
Rotation rate	30 rpm	Crystal density (S)	4.64 g/cm ³
Heating time	15 hr	Liquid density (L)	3.57 g/cm ³
Cooling time	15 hr	Propotional value	20
Pulling rate	7 mm/hr	Interval value	30 sec

직경을 제어하는 변수에 해당된다. proportional value는 기준치와 실제값의 차이에 의하여 비례적으로 유도 가열 장치의 출력을 제어하는 변수로, 이 값이 작으면 원하는 형태로 결정의 직경을 충분히 제어할 수 없으며, 지나치게 큰 경우에는 과도한 직경 변화가 발생한다. 또한 interval time은 결정의 직경 제어를 위하여 출력을 변화시키는 주기를 나타내는 변수로 성장로의 열용량과 단열 상태, 결정의 물성 등에 의존한다. 따라서 두 가지 변수를 최적의 값으로 입력하여야 정밀한 직경 제어가 이루어질 수 있다.

Fig. 5에 proportional value를 20, interval time을 30 sec로 하여 성장시킨 LiNbO_3 단결정들의 형태를 나타냈다. 결정의 직경을 30 mm로 computer에 입력하였을 때 성장된 결정의 직경은 29.8 ~ 30.2 mm로 변화하였으며 결정의 길이를 80 mm로 입력하였을 때 성장된 결정의 길이는 79.7 mm이었다. 따라서 제작된 성장장치는 입력된 data를 최대 1% 이내에서 제어할 수 있는 성능을 지니고 있음을 알 수 있었다. Fig. 6에는 proportional

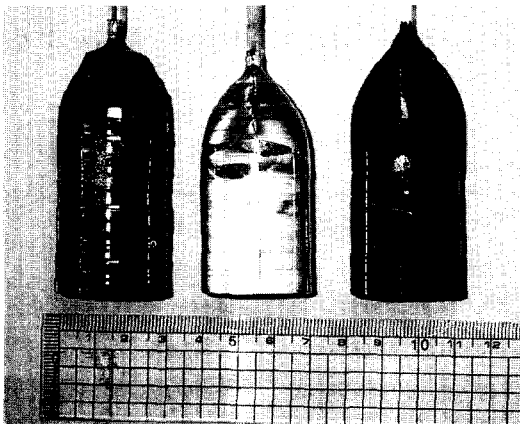


Fig. 5. LiNbO_3 single crystals grown with ADC system.

value를 10, 20, 30으로 변화시키며 결정을 성장시켰을 때 실제로 성장된 결정의 무게 변화를 나타내었다. Fig. 6에서와 같이 기준값에 대한 실제값의 차이는 proportional value가 20일 때 가장 적은 차이를 나타냈다. Proportional value가 20일 때 단위시간당 성장된 결정의 무게변화는 평균적으로 약 10 g/hr 정도가 변화하였다. 이는 분당 약 0.17 g이 변화한 것이므로 대단히 적은 양의 무게 변화에 성장장치가 반응하고 있음을 알 수 있다.

한편 Fig. 6에서 결정의 무게 미분값이 갑자기 변화하는 부분이 있는데, 이는 성장 장

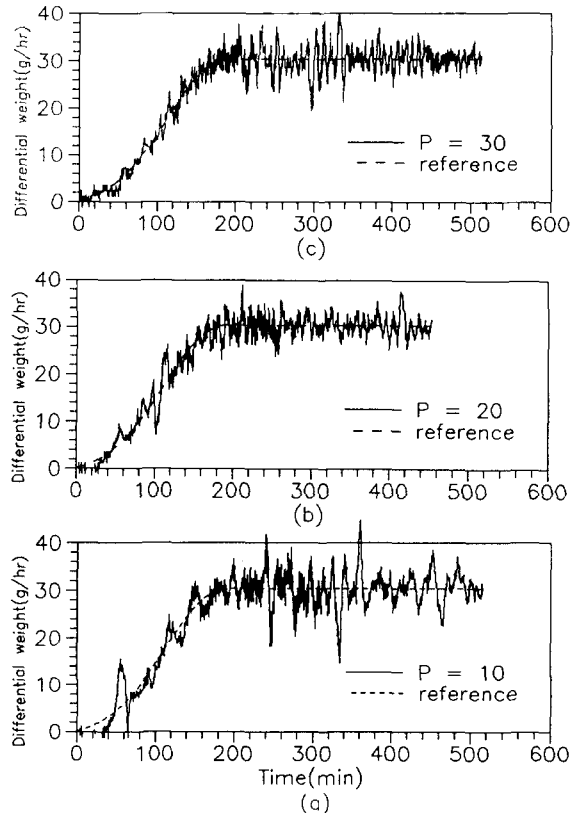


Fig. 6. Plots of differential weight to time according to the variation of proportional values. (a) $P = 10$, (b) $P = 20$ and (c) $P = 30$.

치에 공급되는 전원이 불안정하기 때문이다. 이와같은 현상을 제거하기 위해서는 안정된 전원을 공급시켜주는 자동 전압 조절 장치를 MF generator의 전단에 설치하여야 한다.

향후 보다 우수한 성능을 지닌 성장로를 개발하기 위해서는 정밀한 load cell의 사용과 잡음의 제어기술, 성장로의 조건에 따라서 결정 직경 제어에 필요한 변수들을 자동으로 최적화시킬 수 있는 program의 개발이 필요하다.

5. 결 론

제작이 용이하고 실용적인 자동 직경 제어 장치를 갖춘 Czochralski 성장장치를 제작하였다. 제작된 성장 장치는 일반적인 전자저울을 load cell로 사용하였으며 성장로의 하부에 load cell을 장착한 무게 측정 방식의 자동 직경 제어 방법을 사용하였다. 결정성장 program은 data 입력, 가열, seeding, 성장, 냉각단계로 구성되었으며, load cell과 voltage source를 자동 제어하므로써 입력된 data에 의하여 결정이 성장될 수 있도록 하였다. 제작된 성장로는 직경 30 mm, 길이 80 mm 정도의 단결정을 재현성있게 성장시키고 최대 1 % 이내에서 결정의 형태를 자동 제어할 수 있었다.

참 고 문 헌

- [1] U. Gross and Kersten, J. Crystal Growth 15 (1972) 85.
- [2] H.J.A. van Dijk, G.J. Scholl and P. van der Werf, J. Crystal Growth 21 (1974) 310.
- [3] D.F. O'kane, T.W. Kwap, L. Culitz and A.L. Bednowitz, J. Crystal Growth 13/14 (1974) 624.
- [4] A.E. Zinnes, B.E. Nevis and C.D. Brandle, J. Crystal Growth 19 (1973) 187.
- [5] W. Bardsley, B. Cockayne, G.W. Green, D.T.J. Hurle, G.C. Joyce, J.M. Roslington, P.J. Tufton, H.C. Webber and M. Healey, J. Crystal Growth 24/25 (1974) 369.
- [6] A.J. Valentino and C.D. Brandle, J. Crystal Growth 26 (1974) 1.
- [7] G. Zydzik, Mat. Res. Bull. 10 (1975) 9.
- [8] D.T.J. Hurle, J. Crystal Growth 42 (1977) 473.
- [9] Zoltan Juhasz, J. Crystal Growth 97 (1989) 59.
- [10] W. Bardsley, D.T.J. Hurle and G.C. Joyce, J. Crystal Growth 40 (1977) 13.