

상태방정식에 기초한 Si, LiNbO₃단결정 성장과정의 모의조종특성

장재식, 림천룡

경애하는 최고령도자 김정은동지께서는 다음과 같이 말씀하시였다.

《첨단돌파전을 힘있게 벌려야 나라의 과학기술전반을 빨리 발전시키고 지식경제의 토대를 구축해나갈수 있습니다.》(《조선로동당 제7차대회에서 한 중앙위원회사업총화보고》 단행본 39페이지)

용액인상법(Czochralski:CZ)은 Si와 LiNbO₃단결정을 비롯한 단결정 성장에 널리 이용되고있다.[3, 4] CZ결정성장계의 자동조종은 결정의 직경을 조종하는 체계로 구성된다. 그것은 결정직径의 균일성이 결정성장과정의 안정성과 결정의 물리화학적안정성을 결정하는 중요한 지표로 되기때문이다.

지금까지 결정 혹은 용액의 무게측정법, 메니스커스형태측정법, 용액준위측정법 등 결정직径을 자동조종하는 각종 기술들이 개발되고 성장조건을 최량화하기 위한 MC, MD, FEA 등의 컴퓨터해석모의방법들이 많이 연구되였다.[5] CZ결정성장계의 물리화학적특성의 복잡성과 컴퓨터능력의 제한으로 하여 이러한 모의들에서는 결정성장과정을 정적상태로 국한시켜 고찰하였다. 따라서 결정성장의 동적과정을 정확히 반영할수 없었으며 실시간조종에 적용하기 곤란하였다.

최근 결정성장과정의 동적특성을 리용하여 결정성장과정의 조종을 최량화하기 위한 PID조종, 모형예측조종(MPC) 등 컴퓨터모의조종에 대한 연구[6]도 많이 진행되고있으나 모형과 조종체계의 부정합성으로 하여 CZ결정성장계의 실제특성을 정확히 반영하지 못하고있다.

우리는 CZ성장과정의 동적특성을 반영한 간략화된 모형의 상태방정식[1]에 기초하여 Si와 LiNbO₃단결정의 균일직径성장과정에 대한 상태변수들의 조종특성을 밝혔다.

1. Si단결정성장의 조종특성

CZ결정성장계의 상태방정식을 상태변수(가열체온도 T_h , 도가니온도 T_c , 용액온도 T_m , 결정반경 R_i , 메니스커스높이 H_i , 결정의 유효반경 R_e , 용액높이 H_m , 메니스커스각 ϕ)와 입구변수(결정인상속도 V_p , 입구출력 $P_{입}$)들사이의 호상관계를 반영한 온도상태방정식과 기하상태방정식으로 나눌수 있다.

상태방정식을 반영한 Si단결정 성장에 대한 Matlab Simulink모의조종체계의 구성도는 그림 1과 같다.

그림 1에서 보는바와 같이 모의조종기는 인상속도와 입구출력을 조종하여 균일한 직径을 가진 결정을 성장하도록 구성되였다.

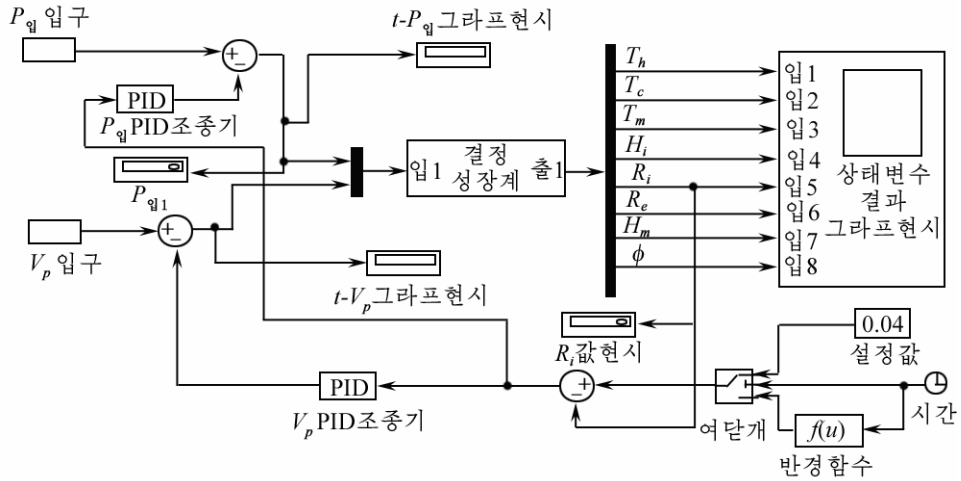


그림 1. Si단결정 성장에 대한 Matlab Simulink모의조종체계의 구성도

시간에 따르는 상태변수들의 모의조종결과는 그림 2와 같다.

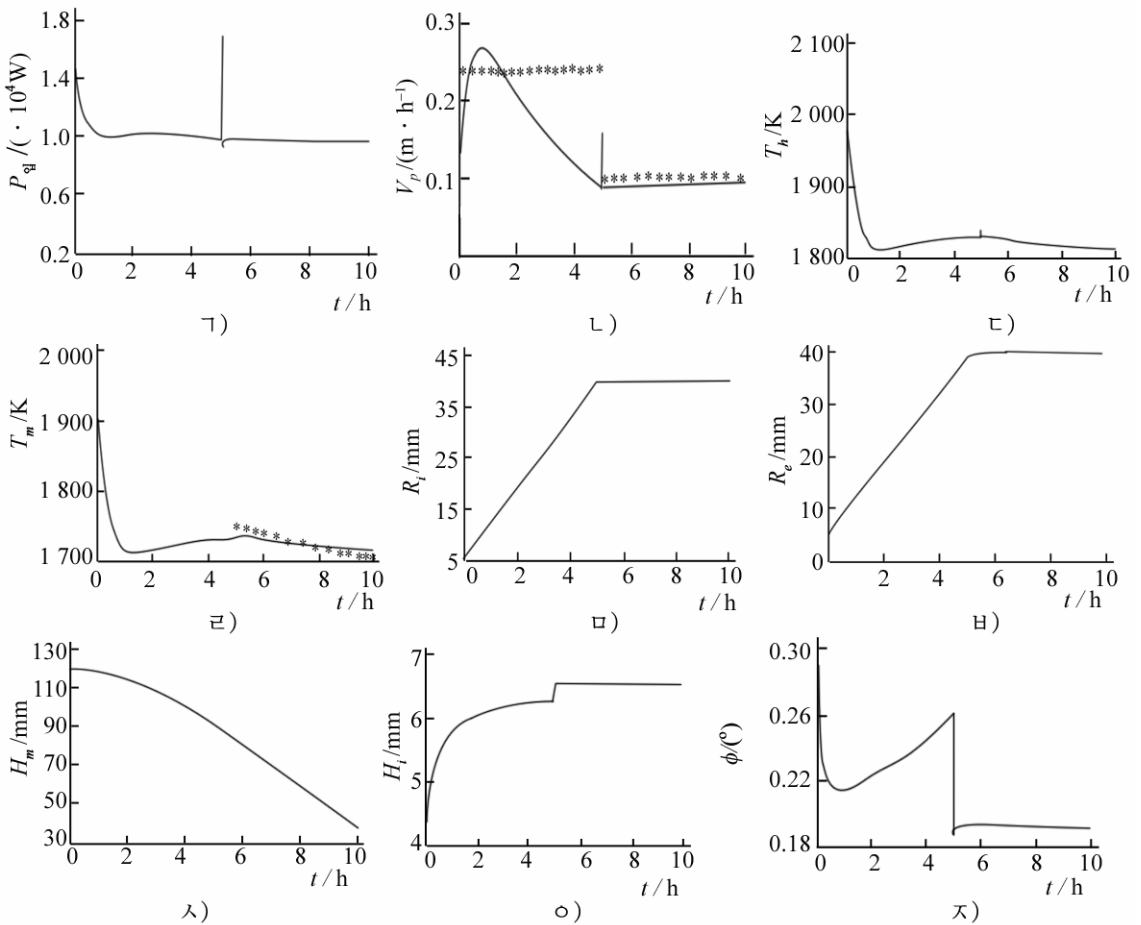


그림 2. 시간에 따르는 상태변수들의 모의조종결과

㉠)~㉠)는 상태변수 P_q , V_p , T_h , T_m , R_i , R_e , H_m , H_i , ϕ 의 변화

*은 실험값[7]

어깨부성장과정은 균일성장단계와 조종특성에서 일정한 차이를 가진다.

그림 2에서 보는바와 같이 어깨부성장과정에 입구출력 $P_{입}$ 은 10^4W 이상의 높은 구간에서 변하다가 균일직경성장단계에서 서서히 감소한다. 인상속도 V_p 역시 어깨부성장단계에서는 $0.18\sim 0.24\text{m/h}$ 이며 균일직경성장단계에서는 $0.09\sim 0.12\text{m/h}$ 이다. 메니스커스각 ϕ 는 어깨부성장과정에 $20\sim 30^\circ$ ($\phi > \phi_0$, ϕ_0 은 특성메니스커스각으로서 재료상수이다.)이며 균일직경성장단계에서는 11° ($\phi = \phi_0$)로 유지된다. 메니스커스높이도 어깨부성장단계에서는 낮아지다가 균일직경성장단계에서는 6.176mm 로 유지되었다.

온도상태를 보면 T_h , T_m 은 어깨부성장단계에서 200K 정도로 감소하다가 서서히 증가한 후 균일직경단계에서는 고르게 감소하였다.

이 결과들은 선행실험결과[7]와 잘 일치한다.

모의조종결과 얻어진 Si단결정성장의 크기는 $\phi 80\text{mm} \times l 130\text{mm}$ 이다.

2. LiNbO_3 단결정성장의 조종특성

반도체결정과 산화물결정의 용액의 류체력학적성질은 크게 차이난다. 반도체단결정성장에서는 인상속도가 수 mm/min 으로서 크지만 산화물단결정성장에서는 반도체단결정성장 인상속도의 $1/10$ 밖에 안된다. 산화물단결정용액의 이러한 특성으로 하여 반도체단결정성장에서는 입구출력뿐만아니라 인상속도를 조종하여 요구하는 직경의 단결정을 성장시키지만 산화물단결정성장에서는 인상속도를 조종할수 없다. 따라서 산화물단결정성장조종에서는 입구출력만을 변화시켰다.

LiNbO_3 단결정 성장에 대한 Matlab Simulink모의조종체계의 구성도는 그림 3과 같다.

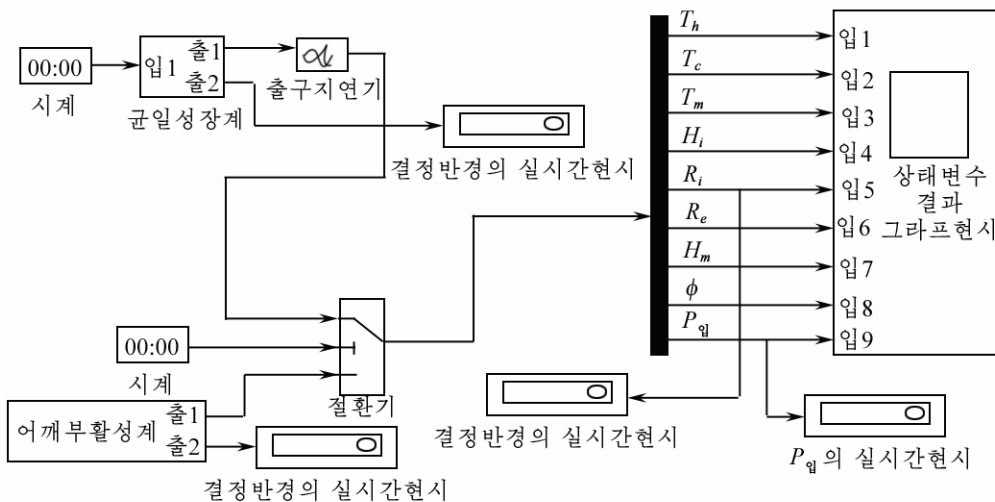


그림 3. LiNbO_3 단결정 성장에 대한 Matlab Simulink모의조종체계의 구성도

그림 3에서 보는바와 같이 산화물단결정성장의 특성으로부터 조종기는 어깨부성장과정과 균일직경성장과정의 모의조종기로 이루어졌다.

시간에 따르는 상태변수들의 모의조종결과는 그림 4와 같다.

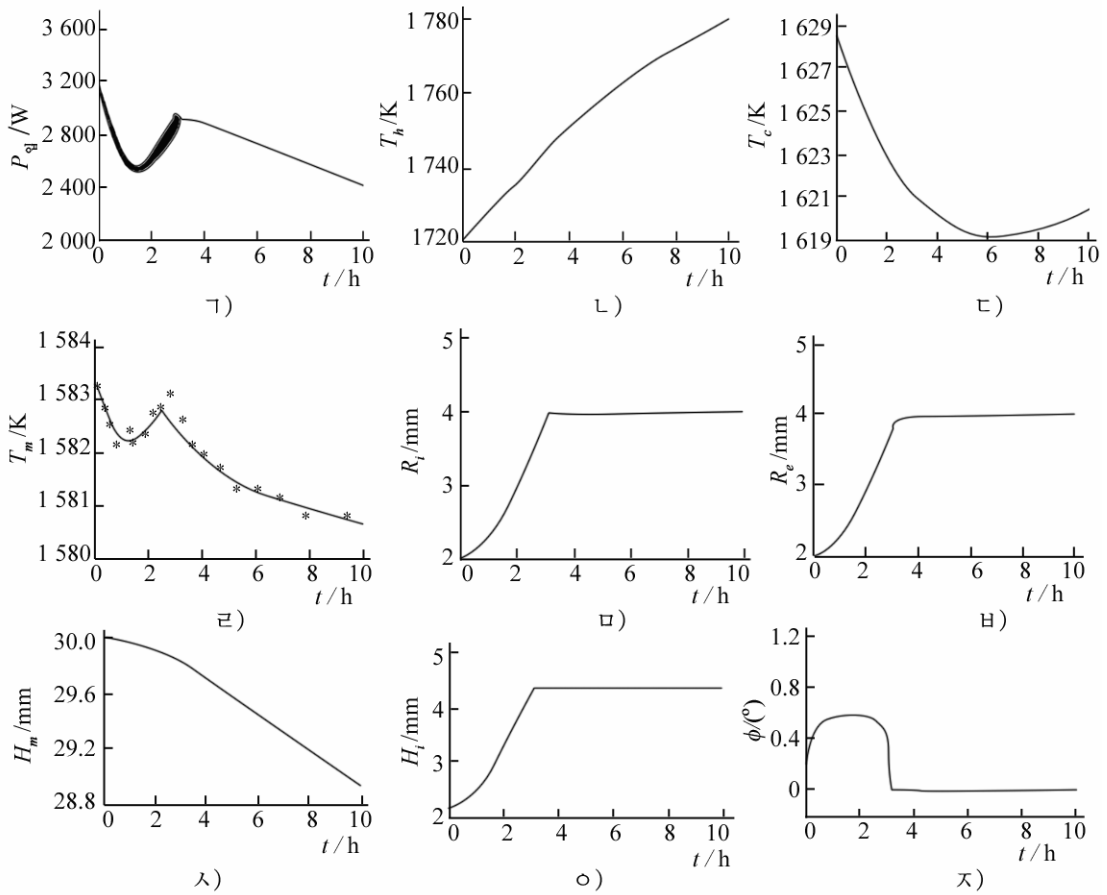


그림 4. 시간에 따르는 상태변수들의 모의조종결과
 가)~스)는 상태변수 P_q , T_h , T_c , T_m , R_i , R_e , H_m , H_i , ϕ 의 변화
 *은 실험값[2]

그림 4에서 보는바와 같이 LiNbO₃단결정성장에서 입구출력 P_q 은 어깨부성장과정에 3 200W로부터 2 500W까지 감소하였다가 다시 2 800W까지 증가하는데 이때 20W정도의 폭으로 심한 요동을 하였다. 균일직경성장단계에서는 2 800W로부터 2 400W까지 55W/h의 속도로 서서히 감소하였다.

메니스커스높이 H_i 는 2.1mm에서부터 4.3mm까지 증가한 후 정상상태의 값으로 유지되었다. 메니스커스각 ϕ 는 어깨부성장단계에서 $\phi > \phi_0$, 균일직경성장단계에서 $\phi = \phi_0$ 에 맞게 변화되었다. 가열기온도 T_h 는 4K/h의 속도로 40K정도 증가하며 용액온도 T_m 은 1 583.2K에서 초기에는 1K정도 낮아졌다가 1 583K까지 증가한 후 1 581K정도로 서서히 감소하였다.

이 결과들은 선행실험결과[2]와 거의 일치한다.

모의조종결과로 얻어진 LiNbO₃단결정의 크기는 $\phi 8\text{mm} \times l 60\text{mm}$ 이다.

맺 는 말

모의조종결과 매개의 상태변수들은 모든 성장과정을 정확히 반영하고있다. 따라서 간략화모형에 기초한 CZ결정성장계의 모의조종체계는 임의의 상태변수를 조종대상으로 하여 낮은 원가로 균일직경의 단결정성장과정을 프로그램화할수 있는 방법론과 이론적기초를 준다.

참 고 문 헌

- [1] 박진명 등; 물리, 1, 28, 주체94(2005).
- [2] 장재식 등; 물리, 4, 24, 1994.
- [3] Han Xu; Energy Procedia, 77, 658, 2015.
- [4] Degao Zhong et al.; Journal of Solid State Chemistry, 233, 120, 2016.
- [5] Kassner Klaus; J. Crystal Growth, 266, 20, 2004.
- [6] A. Yu. Gelfgat et al.; J. Crystal Growth, 276, 1487, 2005.
- [7] Y. Miyazawa; J. Jpn. Crystal Growth, 19, 14, 1992.

주체107(2018)년 3월 5일 원고접수

Simulation Control Characters of Si and LiNbO₃ Single Crystal Growth Process on the Basis of State Equations

Jang Jae Sik, Rim Chon Ryong

On the basis of the set of simplified model state equations to represent the dynamic features of melt pulling method growth process, we constructed the simulation control system of Matlab Simulink and analyzed the control characters of state variables for the total growth process including the shoulder growth process and the constant diameter growth process of single crystals such as Si and LiNbO₃.

Key words: Si, LiNbO₃, simulation control, state equation, growth model, melt pulling method