

수소 제조 태양전지 기관용 고 생산성 다결정 Si 잉코트 제조를 위한 무접촉성 도가니의 설계 및 활용기술

문병문, 신제식, 이상목
한국생산기술연구원 신소재공정팀

NEDO
태양전지
④ detailed data

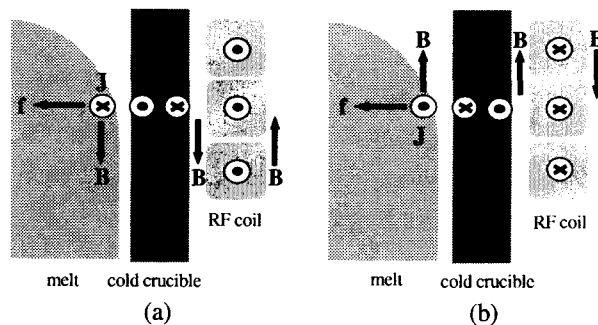
본 고에서는 태양전지 모듈 원가의 60% 이상을 차지하는 실리콘 기관의 생산성을 향상시키고 그에 따라 제조단가를 저감시키기 위한 일환으로 최근 들어 일본과 프랑스를 중심으로 중점적으로 기술개발이 이루어지고 있는 EMCC법(Electro Magnetic Continuous Casting)에 의한 다결정 실리콘 잉고트의 제조기술에 관하여 연구하였다. 특히, 태양전지급의 고순도 잉고트로 제조하기 위해 높은 용융점과 낮은 전기전도도를 갖는 실리콘의 용해 및 주조 공정이 수냉되는 cold crucible 내에서 이루어지게 됨에 따라 발생하는 종래의 EMCC법의 문제점을 해결하고자, 코일전류 및 도가니 구조 등이 Joule 가열 효과 및 pinch 효과에 미치는 영향을 체계적으로 조사하였다. 연구 결과 대용량의 전원장치나 별도의 2차 가열원을 사용하지 않고서도 실리콘 원료의 가열 및 용해 효율을 현격히 향상시키며 용탕의 전 구간에 걸쳐 전자기력을 용탕의 정수압보다 큰 상태로 유지할 수 있는 EMCC용 무접촉성 도가니의 설계기술 및 이를 활용하는 전자기연주공정기술을 확립하였으며, 그 결과 직경 5 cm의 실리콘 잉고트를 1.5 mm/min의 속도로 무접촉 조건에서 연속주조할 수 있었다.

1. 서 론

세계 태양전지 시장을 살펴보면, 1990년대 중반 이후 연 35% 이상의 초고속 성장세를 지속 연간 생산량이 GW 시대로 접어든 가운데 (2004년 연간 태양전지 생산량 1,256 MW), 변환효율과 신뢰성이 우수한 결정질 실리콘 태양전지가 약 94%를 차지 주종을 이루고 있다 [1]. 특히, 1990년대 중반까지는 단결정 태양전지가 주종을 이루어 오던 것이 (단결정 60%, 다결정 25%), 최근에는 제조단가 저감 및 변환효율 향상에 대한 기술개발의 노력으로 다결정 태양전지가 대량 생산되고 있어 (단결정 36%, 다결정 55%), 주력 연구개발 방향이 바뀌어 가고 있는 실정이다. 태양광발전이 대체에너지로서 널리 보급 실용화되기 위해서는 변환효율이 크게 향상되고 생산원가가 획기적으로 절감되어야 하는데, 그 중에서도 특히 전체 태양

전지 모듈원가의 60% 이상을 차지하는 실리콘 기판을 저렴하게 제조할 수 있는 기술이 우선적으로 개발되어야 한다 [2,3].

최근 들어서는 cold crucible을 이용하여 전자기연속주조하는 EMCC법에 의해 태양전지 기판용 다결정 실리콘 잉고트를 제조하려는 연구가 집중적으로 이루어지고 있다 [2-6]. 전자기주조기술에 있어 코일에 교류 전류를 인가하여 자기장 (B) 변화를 유발하면 용탕에 유도전류 (J)가 발생하여 용탕을 가열 (Joule heating) 시키게 되며 또한 유도전류는 자기장과 작용하여 용탕에 전자기력 (Lorentz force, f)을 발생시킨다 (그림 1 참조). 이 때 전자기력은 코일 전류의 방향이 바뀌더라도 플레밍의 왼손법칙에 따라 항상 중심방향으로 향하게 되어 전자기압 (electromagnetic pressure)과 같이 작용하는 효과 (pinch effect)가 있어 용탕과 주형 벽면과의 접촉을 방지하게 된다. 즉, EMCC법은 용탕과 도가니와의 접촉 경감 효과에 의하여 실리콘 잉고트의 오염이 억제되며 동시에 주형이 소모·교체되지 않아 설비 비용이 줄어들고 연속적인 조업이 가능하여 생산성이 크게 향상되는 이점이 있다 [4,5]. EMCC법에 생산 사례로서는 일본의 SUMCO사에서 다결정 실리콘 잉고트를 2004년에 600~800톤 (90~120 MWp), 프랑스의 EMIX®사에서 100톤 (15 MWp)을 생산한 것이 보고되고 있다 [2].



[그림 1 : Cold crucible 내의 용탕에 작용하는 전자기압의 개념적 설명도; 코일전류 지면의 (a) 윗면 방향, (b) 뒷면 방향.]

하지만, 이들 선진국은 기술 공개 및 이전을 꺼리고 있는 상황이다. 또한 이와 같은 EMCC법은 cold crucible이 수냉 구조로 되어있기 때문에 실리콘처럼 용융점이 높고 전기전도도가 낮은 재료를 고 순도의 잉고트로 제조하는 데에 문제점이 발생하게 된다. 따라서 본 연구에서는 대용량의 전원장치나 별도의 2차 가열원을 사용하지 않고서도 실리콘 원료의 가열 및 용해 효율을 현격히 향상시키며 용탕의 전 구간에 걸쳐 전자기력을 용탕의 정수압보다 큰 상태로 유지할 수 있는 EMCC용 무접촉성 도가니의 설계기술 및 이를 활용하는 EMCC 공정기술을 확립하고자 코일전류 및 도가니 구조가 Joule 가열 효과 및 pinch 효과에 미치는 영향을 체계적으로 조사하였다.

2. 본 론

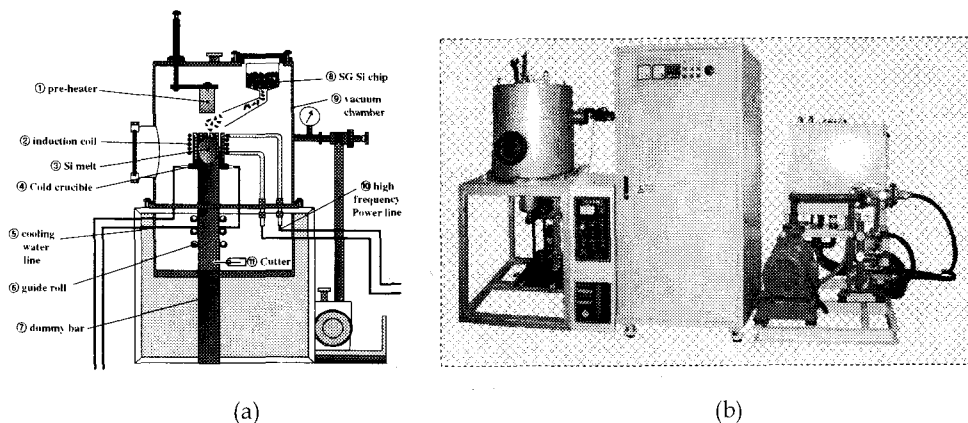
가. EMCC 장치

정수압이 작을 때
Le를 사용하여
부피를

고주파전원을 이용하는 실리콘 잉고트 제조용 EMCC장치의 개념도 및 실제 제작한 장치의 사진을 그림 2에 도시하였다. 철강 등의 EMCC공정에서는 고순도를 요하지 않기 때문에 별도의 용해공정이 존재하고 cold crucible에서는 주조공정만이 이루어지는 반면, 태양전지 기판용 실리콘 잉고트와 같이 고 순도를 요하는 경우에는 cold crucible 내에서 용해공정과 주조공정이 함께 연속적으로 이루어져야 한다. 한편 실리콘은 고체 상태에서는 반도체재료로서 전기전도도가 낮고 용해하면서 전도전자 밀도가 금속과 같은 상태가 되는 재료이기 때문에, 흑연으로 더미바나 예열체를 만들어 cold crucible 내에 위치시켜 초기 용탕을 형성시킨다.

본 연구에 사용된 cold crucible은 하부가 개방된 형태의 수직 연속주조형으로서 높은 전기전도도와 열전도도를 갖는 무산소동 재질로서, 내경 50 mm, 외경 80 mm, 높이 200 mm로서 0.3 mm의 슬릿들에 의해 12개의 세그먼트로 분할되어 있으며 각 세그먼트 내부로 냉각수가 흘러 수냉되는 구조로 제작하였다. 인가 코일은 10 mm 직경의 동관을 사용하여 내경 100 mm, 높이 54 mm인 5턴의 솔레노이드로 cold crucible 외부에 설치하였다. 전원장치의 최대출력은 50 kW이며 주파수는 용탕면의 안정성을 확보하기 위하여 20 kHz의 고주파를 선택하였다.

정수압이 작은 반면 유도발열량은 작고 복사열방출이 큰 용탕상부의 Joule 가열 효과를 극대화시키기 위해, cold crucible의 상부에 다양한 구조의 흑연 도가니를 설치하여 pinch 효과와 Joule 가열효과를 조사하였으며, 그 결과 종방향의 일정 길이 이상을 cold crucible과 동일한 방법으로 0.3 mm의 슬릿들에 의해 12개의 세그먼트로 분할한 높이 3 cm 흑연 도가니를 cold crucible 상부에 설치하였다.



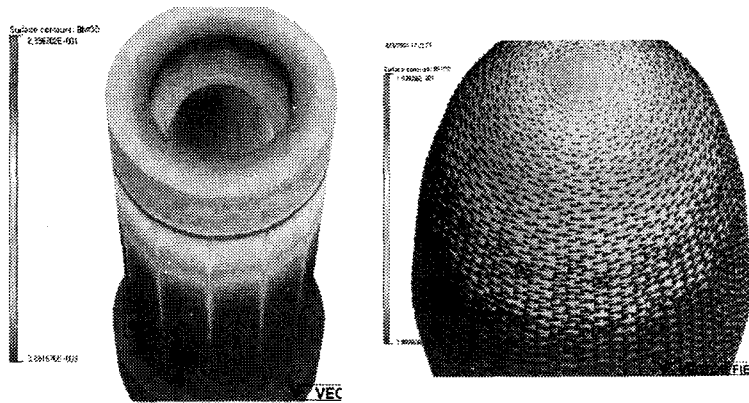
[그림 2 : (a) EMCC 장치의 개념도 및 (b) 본 고에서 제작한 장치]

나. EMCC용 무접촉성 도가니 설계

알루미늄을 사용한 기초실험으로부터 도출된 무접촉 용해 조건에서 실리콘을 용해하여 보았다. 용탕이 형성된 후에는 전기전도도가 증가하여 금속과 같은 특성을 보이기 때문에 Joule 가열이 가능하여 용융 상태가 유지될 것으로 기대하였으나, 알루미늄에 비하여 전기전도도는 낮고 용융점은 높아 가열체를 제거한 후에는 용융 상태를 오래 유지할 수 없었다. 코일전류를 1,230 A까지 증가시킨 경우에는 용융상태를 유지할 수 있었으며 cold crucible과의 무접촉 상태도 가능하였으나, 연속주조를 위하여 2.8~10 mm 크기로 파쇄된 실리콘 원료를 7.4 g/min의 속도 (1.5 mm/min의 연주속도에 해당)로 장입하는 경우에는 용탕의 상부면부터 응고 스케일이 형성되는 문제점이 발생하였다.

일정 전력 투입 조건 하에서 전력효율을 향상시키며 Joule 가열 효과와 전자기압 효과를 최적화하기 위하여, 전자장 해석 전용 프로그램인 OPERA-3D를 사용하여 코일전류 값이 1,230 A일 때 55 mm 높이의 실리콘 용탕에 발생하는 Joule 발열량을 도가니의 다양한 구조에 따라 계산하여 보았다. 도체에 유도전류가 유기되는 경우에는 Biot-Savart법칙의 적용이 불가능하므로 자기장 벡터 포텐셜을 도입하였으며, 요소는 유도전류의 발생을 수치해석적으로 정확히 모사하기 위해서 cold crucible은 표면으로부터 표피두께 (skin depth)의 2배 되는 지점까지 5분할하였으며 용탕은 표피두께 길이 안에서 5분할하여 형성하였다. 전자기장 수치해석 시 필요한 용탕의 형상은 자속밀도 분포와 서로 영향을 주고받으며 전자기변수가 바뀔에 따라 계속 바뀌게 되는데, 이를 수치해석적인 방법으로 예측하여 사용하려면 여러 가지 가정이 필요하고 또한 많은 수의 지배방정식이 커플링돼 비선형성이 심하기 때문에 [7], 본 연구에서는 MgO 분말법[8]으로 측정하여 사용하였다.

전자기장 수치해석으로부터는 그림 3과 같은 요소별 자기장 (B)과 유도전류 밀도 (J) 분포를 얻고 이를 우선 Ohm의 식에 대입 각 요소별 Joule 발열량을 계산하였다. 계산결과를 표 1에 정리하였다.



[그림 3 : 도가니 구조에 따른 (a) 자속밀도 및 (b) 와전류 분포 계산결과.]

<표 1 : 도가니 구조에 따라 각 물질에 발생하는 Joule 발열량>

Joule heating power Crucible configuration	Si melt (W)	Cu cold crucible	Graphite crucible (W)
Cu cold crucible	5,386	11,037	-
Cu + graphite crucible	5,478	9,518	4,183

이로부터 cold crucible만을 사용하는 경우에는 총 Joule 발열량의 약 67%가 cold crucible에서 발생하여 냉각수로 손실되는데, cold crucible 위에 분할형 흑연 도가니를 얹는 경우에는 cold crucible에서 발생하는 Joule 발열량은 14% 정도 줄어드는 반면 실리콘 용탕에 발생하는 발열량은 큰 차이가 없고 흑연 도가니에서 많은 양의 Joule 열이 발생하게 되어, 전체적으로는 총 Joule 발열량의 약 50%만 cold crucible에서 발생되어 냉각수로 손실됨을 알 수 있었다. 이 때, i) 분할형 흑연 도가니의 외벽면과 상하면을 단열재로 처리하여 흑연 도가니에서 발생한 Joule 열의 80%가 내벽면만을 통하여 방출되며, ii) 흑연, 실리콘, 챔버가 회색체 (gray body)이고 방사율 (emissivity)이 0.5이며, iii) 실리콘 용탕과 챔버의 표면온도가 각각 1,420oC, 25oC이며, iv) 흑연 도가니와 실리콘 용탕 사이 그리고 흑연 도가니와 챔버 사이의 형태계수 (view factor)가 각각 0.7과 0.25라고 가정하면 [9], 흑연 도가니의 온도는 2,140oC에 이르고 실리콘 용탕으로는 2,214 W의 열이 복사 열전달되어, 실리콘의 가열 효과는 cold crucible만을 사용하는 경우에 비하여 약 43% 정도 증가하게 됨을 추론할 수 있었다.

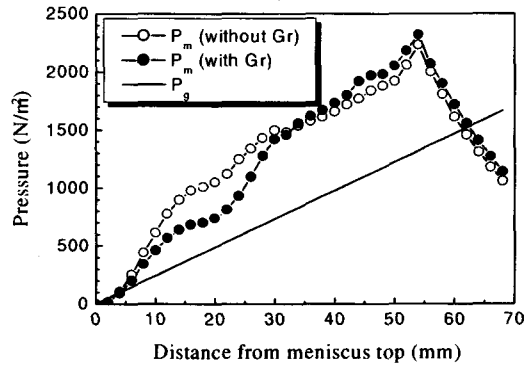
또한 도가니 구조에 따른 실리콘 용탕의 cold crucible 벽면과의 무접촉 상태 유지 여부를 조사하기 위하여, 시간과 공간에 따라 변하는 자속밀도 (B)와 유도전류 (J)로부터 식 (1)을 이용하여 Lorentz 힘 (f)을 계산하고, 이로부터 식 (2)를 이용하여 전자기압 (Pm)을 구한 후 용탕 높이에 의한 정수압 (Pg)과 비교하였다. 그림 4에 도시된 전자기압은 Lorentz 힘 중 r방향의 성분 (fr)을 한 주기 (T)에 걸쳐 평균을 구한 후 다시 이를 용탕 표면 (r=R)에서 중심 축 (r=0)까지 적분하여 구하였다.

$$\vec{f} = \vec{J} \times \vec{B} \quad (1)$$

$$P_m = \frac{1}{T} \int_0^R \int_0^T f_r dt dr \quad (2)$$

그림 4의 계산 결과를 보면 cold crucible 위에 분할형 흑연 도가니 (Gr)를 설치

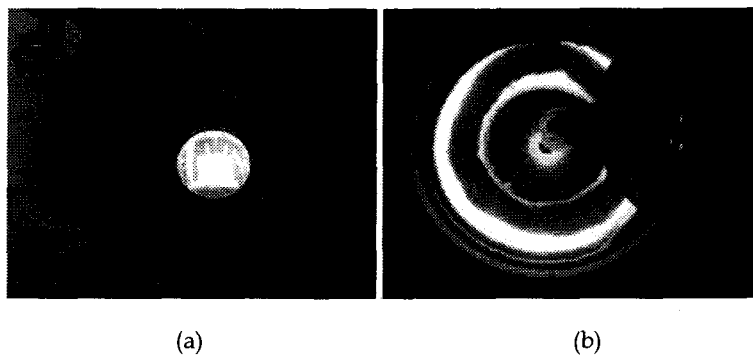
하는 경우 용탕의 상부에서 전자기압이 다소 감소하고 있으나, 이 구간은 정수압 역시 작은 구간이어서 용탕의 전 구간에 걸쳐 전자기압이 정수압보다 커 무접촉 상태를 유지할 수 있음을 알 수 있다.



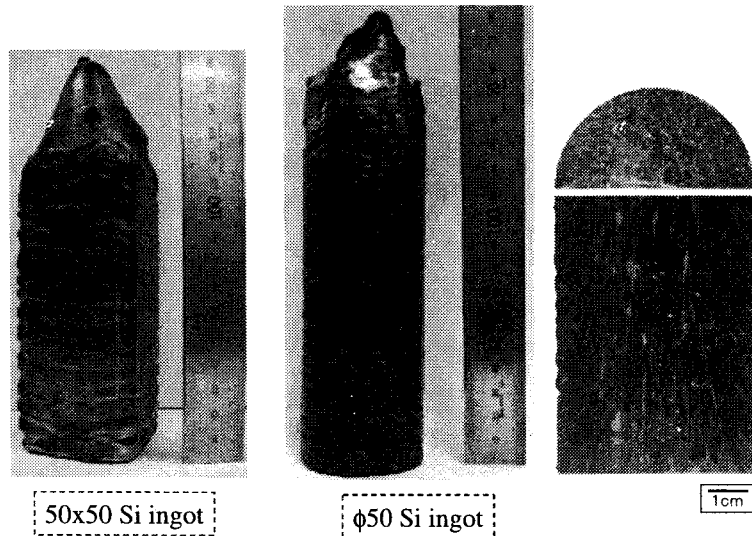
[그림 4 : 도가니 구조에 따른 전자기압 변화 거동과 정수압과의 관계.]

다. EMCC 공정에 의한 실리콘의 제조

그림 5는 본 연구에서 설계/제작한 무접촉성 도가니와 이를 활용하여 구축한 EMCC장치를 사용하여 실리콘 원료를 공급하며 연속적으로 용해주조하는 모습이 다. 또한 그림 6에는 본 연구를 통하여 개선된 무접촉성 도가니를 활용하는 EMCC 장치에 의해 연속주조한 직경 50 mm의 실리콘 잉고트 및 단면적 50×50 mm²의 사각 형상 잉고트의 사진을 도시하였다. 1,230 A의 코일전류를 인가해줌으로써 실리콘을 1.5 mm/min의 속도로 무접촉 조건에서 연속하여 용해주조할 수 있었다. 또한 결정립들은 열류방향에 따라 성장한 전형적인 주상정 조직을 보여 EMCC법에 의해 제조한 다결정 실리콘이 방향성응고를 하였음을 알 수 있다.



[그림 5 : EMCC법으로 실리콘을 연속주조하는 모습; 챔버의 (a) 측면 관찰창 및 (b) 상부 관찰창을 통해 바라본 모습]



[그림 6 : EMCC법에 의해 제조한 50×50 mm²의 사각 형상 및 직경 50 mm의 원형 형상의 다결정 실리콘 잉고트.]

3. 결 론

EMCC법에 의하여 실리콘을 무접촉 조건에서 연속적으로 용해주조하고자 연구를 수행한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 실리콘과 밀도가 비슷한 알루미늄을 이용한 모사실험을 통해 용탕과 cold crucible 벽면과의 무접촉 용해조건을 효과적으로 조사할 수 있었다.
2. 많은 전력을 요하는 실리콘의 전자기구조의 경우 정수압이 낮은 용탕의 상부는 수냉하지 않는 분할형 흑연 도가니 내에 위치하고 정수압이 증가하는 용탕의 하부는 cold crucible 내에 위치하도록 도가니 구조를 설정함으로써, 55 mm의 용탕 전 구간에 걸쳐 전자기압이 정수압보다 크게 유지하면서도 용탕에 대한 Joule 가열 효과를 40% 이상 향상시킬 수 있었다.
3. 무접촉 조건에서 직경 50 mm의 다결정 실리콘 잉고트를 1.5 mm/min의 속도로 연속주조할 수 있었다.
4. EMCC법에 의해 연속주조한 다결정 실리콘 잉고트는 연속주조 방향에 평행한 일방향응고조직을 보였다.

참 고 문 헌

1. M. Schmela, *Photon International* **March** (2005) 66.
2. M. Schmela, *Photon International* **April** (2004) 34.
3. M. Schmela, *Photon International* **September** (2004) 52.
4. I. Perichaud, S. Martinuzzi and F. Durand, *Solar Energy & Solar Cells* **72** (2002) 101.
5. E. Ehret, *Solar Energy Materials and Solar Cells* **53** (1998) 313.
6. G. Dour, E. Ehret, A. Laugier, D. Sarti, M. Garnier and F. Durand, *J. of Crystal Growth* **193** (1998) 230.
7. F. Negrini, M. Fabbri, M. Zuccarini, E. Takeuchi and M. Tani, *Energy Conversion & Management* **41** (2000) 1687.
8. M.J. Ha, in "Effect of Inductor Coil Shape on the Free Surface Shape of Molten Tin" (KAIST M.S. thesis, 1994) p. 30.
9. D.R. Poirier and G.H. Geiger, in "Transport Phenomena in Materials Processing" , TMS (1994).