https://doi.org/10.7735/ksmte.2021.30.4.253

J. Korean Soc. Manuf. Technol. Eng. ISSN 2508-5107(Online)

Check for updates

CO₂ Laser 열탄소환원공정을 이용한 실리콘 나노입자 생산기술 개발

이학주^a, 이승환^a, 김성범^{a*}

Development of Silicon Nanoparticle Production Technology using a CO₂ Laser-assisted Carbothermal Reduction Process

Hakju Lee^a, Seunghwan Lee^a, Seongbeom Kim^{a*}

^a Department of Mechanical Design Engineering, Kangwon National University

ARTICLE INFO

Article history:								
Received	4	June	2021					
Revised	23	June	2021					
Accepted	28	June	2021					
Keywords:								
Silica								
Silicon								
Sand to silicon Carbothermal reduction								
								CO ₂ laser

ABSTRACT

Silica is the most readily available and the cheapest silicon material on Earth. Silicon shows excellent performance in many fields such as semiconductors and solar cells, and is currently a key material in industry. Although an electric arc furnace is used for mass production of silicon, there are critical disadvantages that need to be resolved. In this paper, we propose a CO₂ laser-assisted carbothermal reduction process that incorporates a laser beam as an energy source. This process can successfully reduce silica to silicon, and the products are dry nanopowders that are easy to handle. We analyzed the characteristics of the nanoparticles produced through Raman spectroscopy and electron microscopy analysis. In addition, we present the production yield and energy efficiency through a quantitative analysis for the first time.

1. 서 론

지구에서 가장 쉽게 구할 수 있는 모래는 대부분 실리카(silica) 로 이루어져 있으며 실리카는 가장 저렴한 실리콘(silicon) 원료 물질로 이용된다. 실리카의 화학식은 SiO₂이며 실리콘 원자와 산 소 원자의 강한 결합 때문에 실리카를 실리콘으로 환원시키기 위 해서는 큰 에너지가 필요하다^[1,2]. 실리카와 탄소를 높은 온도로 가 열하면 열탄소환원반응이 일어나며 이 반응을 통해 실리콘을 얻어 낼 수 있다^[3,4]. 현재 산업에서는 열탄소환원반응을 위한 열원으로 대부분 전기아크로(submerged arc furnace)를 사용한다. 이 공정 을 통해 생산된 실리콘의 순도는 약 98%로 metallurgical-grade silicon (MG-Si)이라고 하며 전기아크로에서 MG-Si를 생산하기 위해서 12 kWh/kg의 에너지가 소비된다^[5,6]. MG-Si는 반도체나 태양전지에 사용될 정도의 순도에는 미치지 못하며 여러 가지 화

학 공정을 거쳐 훨씬 더 높은 순도로 정제시켜야 한다^[5,7-10].

실리콘은 각종 전자기기에 사용되는 반도체 물질이며 현재 태 양광 발전 분야에서 이미 상용화된 소재이다. 특히 최근 화석연료 의 고갈 및 환경오염 문제가 거론되면서 실리콘 태양전지는 준수 한 효율과 긴 수명 그리고 인체에 무해한 점을 장점으로 가장 주목 받는 친환경 에너지 생산 소자이다. 또한, 실리콘은 리튬이온배터 리 음극재로 사용되는 경우 기존 탄소 재료보다 이론상 약 10배 이상의 용량을 보이는 등 미래에 더 많은 분야에서 필요로 하기 때문에 실리콘 소재의 수요는 앞으로 계속해서 증가할 것으로 전망 하다^[11-14].

전기아크로공정은 공정 시작 후 최초로 실리콘을 얻어내기까지 많은 시간과 에너지가 필요기 때문에 오직 대량생산에만 최적화되 어 있다. 또한, 열탄소환원반응으로 인해 생성된 가스상의 물질 (SiO, CO)을 지속적으로 배출시켜야 하며 대형 고온로의 온도 차

^{*} Corresponding author. Tel.: +82-33-570-6396

E-mail address: sbkim81@kangwon.ac.kr (Seongbeom Kim).



Fig. 1 Pictures of the sample before (left) and after (right) irradiation with $laser^{[16]}$

이 때문에 발생하는 현상으로 인해 자동화가 어렵고 작업자가 위 험한 환경에 노출되는 등의 한계점이 있다.

2003년 Nohira와 그의 연구팀에 의하여 보고된 바에 따르면, 1,000°C에서 용융된 염속에 담긴 단결정 실리카에 전극을 연결하 여 실리카를 전기화학적으로 환원시키는 것을 성공한 사례가 있었 다. 이는 실리카의 환원 온도를 1,000°C 이하로 낮출 수 있는 매우 효과적인 방법으로 알려졌으며 후속 연구가 계속적으로 진행되어 오고 있다^[15]. 하지만 실리콘 환원에 관한 연구는 매우 희소한 특징 이 있는데 그 이유는 앞서 언급한 바와 같이 실리콘 원자와 산소 원자의 강한 결합을 해리시키기 위해서는 고온으로 가열시켜야 하 며 열에너지를 가하는 방법 중 가장 효율적인 장치가 전기아크로 이기 때문이다. 따라서 전기아크로 외 다양한 시도는 거의 보고되 지 않았다.

최근, CO₂ laser beam이 조사된 분말 상태의 시료(silica, carbon black 혼합물) 표면에서 결정질 실리콘이 성공적으로 생성된 것이 보고되었다. Fig. 1은 레이저에 조사되기 전(좌)과 조사된 후(우) 시료를 위에서 본 모습이다. 실험 후 시료 표면에 생성된 갈색 분말 은 Fig. 1 우측 사진과 같으며, 이를 성분 분석한 결과 결정질 실리 콘임을 확인하였다^[16].

Fig. 2는 기존 CO₂ laser 열탄소환원공정 리액터의 개략도이며 우측에 표현된 사진은 실험 중 A. 위치에서 창을 통해 리액터 내부 를 관찰한 모습이다. 리액터 내부에서는 레이저에 조사된 즉시 2,000°C 이상으로 가열되어 격렬하게 반응하며 화학반응으로 생 성된 가스상의 생성물이 초록색 점선 영역에 보이는 것과 같이 연 기처럼 보이며 출구로 배출되는 유동을 형성한다. Fig. 3은 리액터 내부유동이 형성되는 곳 근처 벽면에 붙여놓은 커버글라스이며 실 험 후 시료 표면에 생긴 갈색 분말은 리액터 내부와 커버글라스 표면에도 마찬가지로 쌓였다.

본 연구에서는 기존에 보고된 CO₂ laser 열탄소환원공정을 개선 하여 생성되는 가스상의 생성물을 포집한 결과 환원된 실리콘을 약 수 백 mg 얻을 수 있었다. 기존 연구는 환원된 실리콘과 원료를 분리하는 것이 어렵고 생산물을 독립적으로 얻지 못한다는 단점으



Fig. 2 A schematic of the conventional reactor and a picture showing the inside of the reactor viewed from A during the experiment (right)



Fig. 3 Brown powder on the cover glass

로 결과 분석이 매우 제한적이었다. 본 연구를 통해 가스상의 생성 물을 유도하여 컬랙터에 포집함으로써 처음으로 정량적인 분석이 가능한 양의 생성물을 얻어 내었다. 또한, 라만 분광법(Raman spectroscopy)과 주사전자현미경(SEM) 분석을 통해 생산된 물질 이 결정질 실리콘이고 직경 수백 나노미터의 분말 형태를 띠고 있 는 것으로 확인되었다.

2. 실험 방법

혼합분말은 분말 상태의 silica (0-0.05 mm Cat. No. Si5210, Daihan agent)와 carbon black (VULCAN XC72R, Cabot Corp.)을 1:1의 몰비율로 혼합하여 내경 14 mm, 깊이 16 mm의 흑연도가니에 1.4 g 담아 5 kg의 힘으로 고르게 압축시켰다. 그 후 핫플레이트에서 100°C로 1시간 동안 가열하여 수분을 제거했 다. 리액터 시스템은 Fig. 4와 같이 구성되었으며 입구에는 캐리어 가스(N₂ gas)가 들어오는 포트가 있으며 MFC (mass flow controller)와 vacuum gauge를 설치하여 내부 분위기를 제어하였 다. 10.6 µm의 파장을 가지는 CO₂ laser beam (continuous wave, maximum power 120 W, model: SR 10i, Rofin-Sinar UK Ltd.)은 상단의 ZnSe window를 통과하여 리액터 내부에 삽 입된 흑연도가니 중앙에 조사된다. 리액터 중간에는 석영 튜브로 연결되어있어 내부를 직접 관찰할 수 있으며 리액터 하단 부분에 는 가스 배기 포트와 실험 중 흑연도가니의 위치를 조정할 수 있도



Fig. 4 Reactor diagram



Fig. 5 Powder collected in the filter paper (left) and powder collected in a vial (right)

록 해주는 장치가 설치되어 있다. 끝단에 설치된 진공펌프를 통해 기체가 원활하게 배출되도록 하였으며 실험 중 생성되는 가스상의 물질은 캐리어 가스와 함께 진공펌프 앞단에 있는 포집기를 지나 포집기 필터에 생성물만 걸러지게 된다.

실험을 위해 건조된 흑연도가니 시료를 리액터 하단부에 삽입하 고 MFC를 통해 질소 10,000 sccm (standard cubic centi meter per minute)을 흘려주었으며 이때 내부 압력은 820 torr였다. 그 후 레이저 출력 100 W로 5분간 조사하였다. 실험 중 흑연도가니 위치를 연속적으로 조정하여 더 파우더의 넓은 범위에 조사되도록 하였다. Fig. 5의 왼쪽 사진은 이러한 과정을 총 17회 반복하여 포집한 필터의 사진이며 오른쪽 사진은 필터의 갈색 분말을 바이 알에 모아 담은 모습이다. 실험결과 총 85분 동안 포집기에 모인 분말의 양은 643.3 mg였다.

3. 결과 및 고찰

마이크로 라만분광기를 통해 갈색 분말의 성분을 분석하였으며 Fig. 6은 마이크로 라만분광기를 통해 532 nm, 2 mW의 레이저 빔으로 수집된 라만 스펙트럼이다. 511 cm⁻¹에서 뚜렷한 피크를



Fig. 6 Raman spectra



Fig. 7 SEM image of brown powder

보이며 이는 결정질 실리콘의 특징을 나타낸다. 통상적인 결정질 실리콘의 피크는 521 cm⁻¹에서 볼 수 있는데, 이러한 피크 위치의 변화는 작은 실리콘 결정과 입자의 경계 및 열응력 때문인 것으로 볼 수 있다^[17-19]. 뚜렷한 결정질 실리콘이 나온 것은 열탄소환원공 정이 성공적으로 이루어진 것을 의미한다. 갈색 분말의 형태는 Fig. 7 SEM 이미지를 통해 관찰할 수 있는 바와 같이 약 80~200 nm의 직경을 가지는 나노입자인 것을 확인하였다.

실리카의 열탄소환원반응의 핵심 반응식은 다음과 같이 정리할 수 있다.

$$SiO_2(s) + 2C(s) \rightarrow Si(g) + 2CO(g)$$

그러나 실제 일어나는 화학반응은 이러한 단순한 화학반응을 통 해 곧바로 실리콘으로 환원되지 않는 것으로 알려져 있으며^[20], 지 금까지 알려진 열탄소환원과정에서 일어나는 화학반응식은 다음 과 같다^[4,21-25].



Fig. 8 Experimental table a (left) and b (right) condition experiment picture

 $SiO_2(s) + C(s) \rightarrow SiO(g) + CO(g)$ (1)

$$3SiO(g) + CO(g) \rightarrow 2SiO2(l) + SiC(s)$$
(2)

 $2SiO(g) \rightarrow Si(l) + SiO_2(l) \tag{3}$

 $SiO(g) + 2C(s) \rightarrow SiC(s) + CO(g)$ (4)

 $SiC(s) + SiO(g) \rightarrow 2Si(l) + CO(g)$ (5)

$$2SiO_2 + SiC \rightarrow 3SiO(g) + CO(g) \tag{6}$$

$$SiO_2(l) + Si(l) \rightarrow 2SiO(g)$$
 (7)

여러 가지 화학반응식 중 실리콘 생성과 직접적인 관련이 있는 반응은 화학반응식 (3), (5)이며 SiO나 SiC와 같은 중간생성물을 거쳐 실리콘으로 환원되는 것을 알 수 있다. 본 연구의 공정조건에 서는 실리카와 탄소 이외에 다른 물질이 없으므로 레이저에 조사 된 시료에서 화학반응식 (1)을 통해 가장 먼저 SiO와 CO 기체가 생성될 수 있다. SiO가 생성되면 화학반응식 (2)와 (4)를 통해 SiC 도 생성될 수 있으며 실리콘 생성반응을 위한 필요조건을 충족시 킬 수 있다. 기존 실리카의 열탄소환원의 정확한 화학반응은 아직 도 명확하지 않은 부분이 존재하며, 본 연구에서 레이저빔에 의한 열탄소환원반응의 명확한 메커니즘은 밝혀지지 않았다. 특히, 레이 저빔에 의한 열탄소환원은 레이저 조사 후 수 초에 반응이 일어남 을 관찰하였고, 이는 기존 반응과는 매우 다른 dynamics를 가질 것으로 추측이 된다.

실험 시작 후 시료 표면에서는 순간적인 가열과 격렬한 화학반 응으로 불꽃과 연기가 발생한다. 이 연기는 흑연도가니에 약 10 mm 깊이로 담긴 혼합분말을 전부 소비할 때까지 발생한다. 레이 저 직경은 약 6 mm이며 도가니에 실험 시작 후 약 1분간 발생한 다. 발생한 연기는 리액터 내부에 체류하며 흑연도가니 상단의 표 면이나 리액터 내부 벽면에 갈색 분말로 발견된다. 리액터 입구에 서 들어온 질소는 고온으로 발생하는 연기를 냉각시키고 컬렉터에 수집될 수 있도록 출구로 배출되는 유동을 형성한다.

Table	1	Experiment	table	(a,	b))
-------	---	------------	-------	-----	----	---

No.	Time (s)	Loss (mg)
a (left)	60	44.7
b (right)	300	215.4



Fig. 9 Histogram of weight loss and pressure change measured during the continuous experiment (Loss - Mean 190.8 mg, SD 13.2 mg, Pressure - Mean 852.4 Torr, SD 14.7 Torr)

실험 시작 후 약 1분간 격렬하게 생성되는 연기를 볼 수 있지만, 레이저 조사영역에 있는 시료가 전부 소진된 이후부터는 화학반응 이 느려지고 연기가 거의 생성되지 않는다. 따라서 어느 정도 시간 이 지난 뒤 흑연도가니 위치를 조정시킨 후 실험을 진행하였다. Fig. 8의 좌측 사진(Exp. No. a)은 위치를 조정하지 않은 실험결과 이며 실험 시작 1분 이내에 연기가 생성되는 것이 현저하게 줄어들 었다. Fig. 8의 우측 사진(Exp. No. b)은 레이저 조사영역을 조정 하며 5분 동안 실험한 결과이며 깊게 파인 구덩이의 면적이 위치를 조정하지 않은 실험에 비해 확연히 넓어졌다. Table 1은 실험시간 (time)과 실험 전후 흑연도가니의 무게를 측정하여 계산한 질량 손실(loss)이다. 실험시간이 5배 증가함에 따라 질량 손실 또한, 약 5배가량 증가한 것을 알 수 있다.

Fig. 9는 총 17회의 연속실험 동안에 측정된 질량 손실(loss)과 압력변화(pressure)를 나타낸 히스토그램이다. 질량 손실과 압력 변화의 평균(mean)은 각각 190.8 mg, 852.4 mg이며 표준편차 (standard deviation, SD)는 13.2 mg, 14.7 Torr이다. 각각의 질 량 손실을 합한 총 질량 손실(total loss)은 3242.9 mg이며 수집된 파우더(collected powder)는 643.3 mg였다. 따라서 레이저 파워 100 W의 조건에서 7.5 mg/min의 생산성을 가지며 이 공정에서 생산된 물질이 이상적인 열탄소환원반응을 통해 환원된 순수한 실 리콘이라고 가정하면 원료 투입대비 얻어낸 실리콘의 생산 수율은 74%이며 전체실험 동안 CO₂ 레이저를 통해 투입된 에너지대비 실리콘의 생산효율은 22.198 MJ/mol로 계산되었다. 결과적으로 이상적 열탄소환원반응의 이론적 엔탈피 변화는 △H=638.4 kJ/mol이며 실리카를 열탄소환원 시키기 위한 에너지공급 수단으 로 CO2 레이저를 사용할 때 약 5%의 에너지 효율을 가진다.

그러나, 계산된 에너지 효율에는 오차를 무시할 수 없다. 실제 열탄소환원반응은 더 복잡한 화학반응을 통해 이루어지기 때문에 가정된 엔탈피 변화보다 높은 에너지가 필요하다. 원료로 사용된 실리카의 불순물들의 화학반응에 많은 에너지가 사용되었을 것으 로 생각된다. 따라서 정확한 메커니즘에 관한 후속 연구가 필요하 며 메커니즘 연구에 따른 공정 최적화를 통해 개선될 여지가 매우 많을 것으로 예상한다.

4. 결 론

본 연구에서는 CO₂ laser를 이용한 실리카의 열탄소환원공정을 개발하였으며 실리카/카본 혼합물에 레이저빔을 조사 후 성공적으 로 환원공정이 일어남을 확인하였다. 개선된 리액터 시스템을 고 안하여 기존 공정보다 반응 면적을 더 넓게 하여 총 실험시간을 늘리고 리액터 내부유동을 통해 생성물질을 포집하는 것에 성공하 였다. 포집된 물질은 갈색 분말의 형태로 존재하며 직경 약 80~200 nm의 실리콘 나노입자였다. 또한, 포집된 실리콘 나노입 자의 정량적인 분석을 처음으로 시도하였다. CO₂ laser 열탄소환 원공정의 원료 투입대비 얻어낸 실리콘의 생산 수율은 약 74%로 분석된다.

본 연구에서 제안한 CO₂ laser를 이용한 실리카 열탄소환원공정 은 기존 방법과는 매우 대조되는 특성을 지닌다. 열원으로 사용하 는 CO₂ laser의 특성상 공정이 빠르게 진행되며 소량 생산과 선택 적인 패터닝에 용이하고 자동화 공정에 매우 최적화된 방법이다. 이것은 기존의 산업에서 사용되는 전기아크로 기술의 단점을 대부 분 보완할 수 있다. 또한, 실리콘을 건식 나노분말 형태로 얻을 수 있기 때문에 기존 공정 대비 환원되는 실리콘의 생산성을 높일 가능 성이 있다. 더 나아가 공정을 최적화를 이룬다면 실리콘 나노입자의 우수한 특성을 이용한 이차전지 음극 소재와 같은 고기능성 첨단 소재에 적용되는 등의 활용가치가 매우 클 것으로 생각한다.

후 기

본 연구는 한국연구재단 연구비 지원으로 수행된 연구입니다 (2017R1C1B2011606, 2021R1I1A3059984).

References

 Nordberg, R., Brecht, H., Albridge, R. G., Fahlman, A., Van Wazer, J. R., 1970, Binding Energy of the "2p" Electrons of Silicon in Various Compounds, Inorg. Chem., 9:11 2469-2474, https://doi.org/10.1021/ic50093a018.

- [2] Allendorf, M. D., Melius, C. F., Ho, P., Zachariah, M. R., 1995, Theoretical Study of the Thermochemistry of Molecules in the Si-OH System, J. Phys. Chem., 99:41 15285-15293, https://doi.org/10.1021/j100041a052.
- [3] Furgal, J. C., Lenora, C. U., 2019, Green Routes to Silicon-based Materials and their Environmental Implications, Phys. Sci. Rev., 5:1 20190024, https://doi.org/10.1515/psr-2019-0024.
- [4] Dal Martello, E., Tranell, G., Gaal, S., Raaness, O. S., Tang, K., Arnberg, L., 2011, Study of Pellets and Lumps as Raw Materials in Silicon Production from Quartz and Silicon Carbide, Metall. Mater. Trans. B, 42 939, https://doi.org/10.1007/s11663-011-9529-y.
- [5] Chigondo, F., 2018, From Metallurgical-grade to Solar-grade Silicon: An overview, Silicon, 10 789-798, https://doi.org/10.10 07/s12633-016-9532-7.
- [6] Nguyen, T. T., Fukaya, N., Sato, K., Choi, J. -C., Kataoka, S., 2018, Technoeconomic and Environmental Assessment for Design and Optimization of Tetraethyl Orthosilicate Synthesis Process, Ind. Eng. Chem. Res., 57:6 2192-2199, https://doi.org/ 10.1021/acs.iecr.7b03895.
- [7] Goodrich, A., Hacke, P., Wang, Q., Sopori, B., Margolis, R., James, T. L., Woodhouse, M., 2013, A Wafer-based Monocrystalline Silicon Photovoltaics Road Map: Utilizing Known Technology Improvement Opportunities for Further Reductions in Manufacturing Costs, Sol. Energy Mater. Sol. Cells, 114 110-135, https://doi.org/10.1016/j.solmat.2013.01. 030.
- [8] Fu, R., James, T. L., Woodhouse, M., 2015, Economic Measurements of Polysilicon for the Photovoltaic Industry: Market Competition and Manufacturing Competitiveness, IEEE J. Photovolt., 5:2 515-524, https://doi.org/10.1109/JPHO TOV.2014.2388076.
- [9] Louwen, A., Van Sark, W., Schropp, R., Faaij, A., 2016, A Cost Roadmap for Silicon Heterojunction Solar Cells, Sol. Energy Mater. Sol. Cells, 147 295-314, https://doi.org/10.1016/j.solmat. 2015.12.026.
- [10] Ye, K., Wang, J., Xing, P., Du, X., Gao, B., Kong, J., Luo, X., 2019, Study of the Preparation of High Purity Silicon by a New Electro-thermal Metallurgy Method, Silicon, 11 1175-1184, https://doi.org/10.1007/s12633-017-9679-x.

- [11] Chan, C. K., Peng, H., Liu, G., McIlwrath, K., Zhang, X. F., Huggins, R. A., Cui, Y., 2008, High-performance Lithium Battery Anodes using Silicon Nanowires, Nat. Nanotechnol., 3 31-35, https://doi.org/10.1038/nnano.2007.411.
- [12] Hertzberg, B., Alexeev, A., Yushin, G., 2010, Deformations in Si- Li Anodes upon Electrochemical Alloying in Nano-confined Space, J. Am. Chem. Soc., 132:25 8548-8549, https://doi.org/10.1021/ja1031997.
- [13] Cui, L.-F., Hu, L., Wu, H., Choi, J. W., Cui, Y., 2011, Inorganic Glue Enabling High Performance of Silicon Particles as Lithium Ion Battery Anode, J. Electrochem. Soc., 158:5 A592, https://doi.org/10.1149/1.3560030.
- [14] Wu, H., Cui, Y., 2012, Designing Nanostructured Si Anodes for High Energy Lithium Ion Batteries, Nano Today, 7:5 414-429, https://doi.org/10.1016/j.nantod.2012.08.004.
- [15] Nohira, T., Yasuda, K., Ito, Y., 2003, Pinpoint and Bulk Electrochemical Reduction of Insulating Silicon Dioxide to Silicon, Nat. Mater., 2 397-401, https://doi.org/10.1038/nmat900.
- [16] Maeng, S. -H., Lee, H., Park, M. S., Park, S., Jeong, J., Kim, S., 2020, Ultrafast Carbothermal Reduction of Silica to Silicon using a CO 2 Laser Beam, Sci. Rep., 10 21730, https://doi.org/ 10.1038/s41598-020-78562-1.
- [17] Yue, G., Lorentzen, J. D., Lin, J., Han, D., Wang, Q., 1999, Photoluminescence and Raman Studies in Thin-film Materials: Transition from Amorphous to Microcrystalline Silicon, Appl. Phys. Lett., 75:4 492-494, https://doi.org/10.1063/1.124426.
- [18] Saleh, R., Nickel, N. H., 2003, Raman Spectroscopy of B-doped Microcrystalline Silicon Films, Thin Solid Films, 427:1-2 266-269, https://doi.org/10.1016/S0040-6090(02)01203-8.
- [19] Paillard, V., Puech, P., Laguna, M. A., Carles, R., Kohn, B., Huisken, F, 1999, Improved One-phonon Confinement Model for an Accurate Size Determination of Silicon Nanocrystals, J. Appl. Phys., 86:4 1921-1924, https://doi.org/10.1063/1.370988.
- [20] Laine, R. M., Furgal, J. C., Doan, P., Pan, D., Popova, V., Zhang, X., 2016, Avoiding Carbothermal Reduction: Distillation of Alkoxysilanes from Biogenic, Green, and Sustainable Sources, Angew. Chem.-Int. Edit., 128:3 1077-1081, https://doi.org/10. 1002/ange.201506838.
- [21] Miller, P. D., Lee, J. G., Cutler, I. B., 1979, The Reduction of Silica with Carbon and Silicon Carbide, J. American Ceram. Soc., 62:3-4 147-149, https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1979. tb19041.x.

- [22] Fei, L., 2017, SiC Production Using SiO2 and C Agglomerates, Doctoral Dissertation, Norwegian University of Science and Technology (NTNU), Norway.
- [23] Mølnås, H., 2010, Investigation of SiO Condensate Formation in the Silicon Process, Project report in TMT 4500, Norwegian University of Science and Technology (NTNU), Norway.
- [24] Michal, K., Kero, I., Wittgens, B., 2015, Challenges in Transporting the Off-Gases from the Silicon Process, 2015-Sustainable Industrial Processing Summit (SIPS 2015) Vol. 3: Takano Intl. Symp. / Metals & Alloys Processing, 157-166.
- [25] Ringdalen, E., Tangstad, M., 2016, Phase Transformations in Quartz and it's Effect on Furnace Operation, Silicon Chem. Sol. Ind. XIII, Kristiansand, Norway.



Hakju Lee

Graduate Student in the Department of Mechanical Design Engineering, Kangwon National University. His research interest is carbothermal reduction of silica E-mail: kinv13@naver.com

Seunghwan Lee

Undergraduate Student in the Department of Mechanical Design Engineering, Kangwon National University. His research interest is designing of mechanical system. E-mail: lsh961204@gamil.com



Seongbeom Kim

Professor in the Department of Mechanical Design Engineering, Kangwon National University. His research interest is production of nanoparticles and its applications. E-mail: sbkim81@kangwon.ac.kr