

单晶炉导流筒、热屏及炭毡对单晶硅生长影响的优化模拟

苏文佳¹, 左 然¹, Vladimir Kalaev²

(1. 江苏大学能源与动力工程学院, 镇江 212013; 2. STR Group, St Petersburg, Russia)

摘要:在 CZ 法生长太阳能级单晶硅中, 单晶炉的导流筒、热屏和炭毡对晶体生长有很大影响。通过对上述三个部件进行改进优化, 并通过数值模拟对优化前后晶体和熔体的热场、热屏外表面与石英坩埚内壁面之间的氩气流动以及晶体中的热应力进行分析, 得出以下结论: 石墨导流筒的引入减少了炉体上部的氩气流动涡胞, 进而减少了 SiO₂ 在单晶炉上部的沉积; 优化后的热屏减少了加热器对晶体的烘烤, 使结晶速率加快; 优化后的侧壁炭毡阻止了加热器向上部的热损失。优化后在加热器功耗不变时, 结晶速率至少可提高 35%, 而不增加宏观位错的发生概率。
关键词:单晶硅; 数值模拟; 热屏; 炭毡

中图分类号: O78

文献标识码: A

文章编号: 1000-985X(2010)02-0524-05

Optimization of Crystal Growth by Changes of Flow Guide, Radiation Shield and Insulation in CZ Si Furnace

SU Wen-jia¹, ZUO Ran¹, Vladimir Kalaev²

(1. School of Energy and Power Engineering, Jiangsu University, Jiangsu 212013, China;

2. STR Group, St Petersburg, Russia)

(Received 7 July 2009, accepted 15 September 2009)

Abstract: In solar-grade single crystal growth with CZ method, the geometries of flow guide, radiation shield and side wall insulation are main parameters affecting the heat fields and crystal growth. By changing the above parameters, an optimization of the heat fields was attempted. Numerical simulations of the thermal fields before and after optimization were conducted. Through analysis of the temperature distribution in the crystal and melt, the argon gas flow between radiation shield and quartz crucible, and the thermal stress in the crystal, it was found that the optimized flow guide can decrease the SiO₂ deposition on the upper wall; the optimized radiation shield can reduce the baking of crystal by the heater; and the optimized side insulation can prevent the heat loss upward. In general, after optimization, under the same heater power, the crystallization rate increases over 35%, without increase of macro-dislocation probability.

Key words: Si single crystal; numerical simulation; radiation shield; carbon felt

收稿日期: 2009-07-07; 修订日期: 2009-09-15

基金项目: 江苏省普通高校研究生科研创新计划资助项目 (No. 1291130015)

作者简介: 苏文佳 (1982-), 男, 吉林省人, 博士研究生。E-mail: wjs1111@126.com

通讯作者: 左 然, 教授, 博士生导师。E-mail: rzuo@ujs.edu.cn

1 引言

直拉法(即 CZ 法)晶体生长是用于半导体和太阳电池单晶硅的主要生长方法。对于太阳电池来说,最重要的是降低单晶棒的成本,光伏组件 50% 以上的成本消耗于单晶棒和晶片的生产。通常有两种方法来降低成本:一是降低加热器的功耗;二是提高拉晶速度。两种方法中,提高拉速的方法更有效。拉速提高,不仅缩短了晶体生长时间,节省了功耗,而且增加了产率。但是,简单地提高拉速,会带来晶体质量的下降;拉速过快甚至可能产生多晶。因此,在提高拉速的同时,必须对晶体生长系统的热场进行优化,以保证生长出质量合格的晶体。工业设备的改造和试验非常昂贵并且耗时,利用计算机数值模拟,能够快速而经济地再现各种晶体生长过程,预测其中的物理现象,包括熔体湍流、气体对流、磁场、晶转、坩转、缺陷形成等^[1-6]。

对于直拉法单晶炉,国内外学者在热场优化数值模拟方面进行了大量研究,北京有研的高宇、周旗钢等^[1]分析了热屏和后继加热器对直拉硅单晶生长过程中固液界面形状的影响,河北工业大学任丙彦等设计了以矮加热器为核心的复合式加热器系统^[2],并引入导流筒^[3],降低了硅中的氧含量,也有利于提高拉速。台湾国立大学的 Lee 等^[4]设计了镀有不同涂层的钨和石墨热屏、增加了额外的侧面和底面保温层,大大降低了功率和氩气的消耗。俄罗斯 Soft-Impact 公司的 Smimova 等^[5]采用了一种新的炉体结构,生长速率增加了 15%~30%。

在对单晶炉热场进行改进时,通常采用三种方法:(1)改变热屏的形状及尺寸;(2)改变侧壁和底部隔热层的厚度;(3)在热屏上方增加导流筒。本文针对由江苏华盛天龙公司生产并广泛使用的 DRF-85 单晶炉,利用数值模拟方法,尝试对单晶硅的热场和生长进行改进。目的是在保证晶体质量的前提下,降低功耗,提高拉速,实现节能并提高产率的目的。

2 模型

采用德国 STR 公司开发的晶体生长专业模拟软件 CGSim,该软件用于直拉法 Si 单晶生长,所预测的生长速率、功率消耗、晶体缺陷等已经被大量实验证实^[7-14]。

在单晶炉的物理模型中,考虑了各部件之间的整体热交换,包括固体内部的导热、熔体和气体中的对流、各表面之间的辐射以及液固相变效应。模型也考虑了液固界面的几何形状变化、改进的 Chien 湍流模型以及晶体中的热应力。计算方法采用有限体积法(流体区域)与有限元法(固体区域)结合。在上述基础上,计算二维轴对称的单晶炉的流场和温场,以及晶体中的热应力。详细的建模方法参见文献[15]。

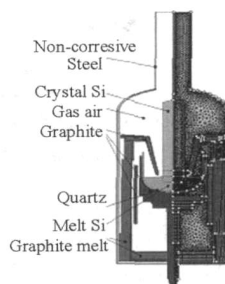


图 1 炉体结构(左)及网格划分(右)

Fig 1 Structure of furnace (left) and the computation grid (right)

3 建模及参数设置

根据实际的炉体结构,对其进行轴对称简化,得到如图 1(左)所示炉体结构。炉体上部观察孔、下部石墨电极引脚和氩气出口均为非轴对称,视其对整体热场的影响程度,按照等效传热的原则将其简化。计算网格约 14,500 个,如图 1(右)所示,其中对重点关注的熔体和液固界面等进行网格加密细化。

模拟中使用的主要材料的物性参数如表 1 所示。晶体直径 150 mm,晶体总高度 1200 mm,总投料 60 kg,晶转 10 r/min,坩转转速 6 r/min,氩气流量 3000 L/h,炉内气压 1300 Pa,石英坩埚内径 437 mm,外径 457 mm。

4 炉体结构的优化

如图 2 所示,在原有单晶炉结构的基础上,分别对导流筒、热屏和底部/侧壁炭毡进行了改进,目的是在保证晶体质量的前提下,提高生长速率,达到节能的目的。

(1)对导流筒的改进:在热屏上方增加一高度为 230 mm 的石墨导流筒;

(2)对热屏的改进:改进前,热屏的外表面与石英坩埚侧面流道较宽,热屏下表面与自由液面之间的导流流道面积较小;改进后,热屏外表面与石英坩埚侧面形成一定锥度(渐缩流道),且流道变窄,同时热屏内部炭毡加厚,热屏下表面与自由液面之间的导流流道面积增大;

(3)对底部 侧壁炭毡的改进:将石墨加热器上方的侧壁炭毡和底部炭毡加厚。

表 1 模拟中使用的主要物性参数^[16]

Table 1 Physical parameters of the materials used in simulation^[16]

	Heat capacity/ $J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$	Heat conductivity/ $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	Emissivity
Si(crystal)	1000	$98.89 - 9.42 \times 10^{-2} T + 2.89 \times 10^{-5} T^2$	$0.9016 - 2.6208 \times 10^{-4} T$
Si(melt)	915	66	0.318
Graphite-p	500	$105 \times (T/300)^{-0.3} \times \exp[-3.5 \times (T - 300) \times 10^{-4}]$	0.8
Graphite felt	$0.634T + 516$	$0.1773 \exp[0.7 \times 10^{-3} (T - 273)]$	0.9
Ar	520.8	$0.01 + 2.5 \times 10^{-5} T$	-
Quartz crucible	900	4	0.85
Non-corrosive steel	437.5	15	0.45

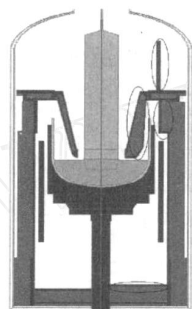


图 2 改进前(左)和改进后(右)的对比图

Fig. 2 Comparison before (left) and after (right) optimization

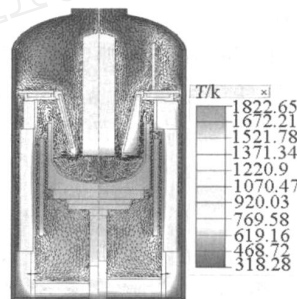


图 3 改进前(左)和改进后(右)的温场、流场对比图

Fig. 3 Comparison of the thermal and flow fields before (left) and after (right) optimization

4.1 改进后的温场和流场变化

以晶体生长高度 600 mm 为例,由图 3 可看出,导流筒、热屏和底部 侧壁炭毡改进的结果,带来以下优点:

(1)热屏上方石墨导流筒的引入对氩气形成导流作用,明显减小了炉体上部氩气流动涡胞,减少了 SiO₂ 在单晶炉上部的沉积概率;由于氩气流动加快,带走了更多结晶潜热,从而使生长速率增大;

(2)改进后,晶体内的等温线更平坦,表明生长时的液固界面更接近平界面,有利于降低晶体内的热应力和获得均匀的溶质分凝;

(3)热屏外表面与侧壁炭毡之间的平均温度,由改进前的约 1513 K 降低到约 1391 K,表明炉体上部侧壁炭毡有效阻止了加热器热量向上的热损失,达到了节能的目的;

(4)由于热屏外表面与石英坩埚内壁面由下而上形成一定锥度,氩气流道呈渐缩趋势,且流道变窄。氩气平均流速由改进前约 3 m/s 增大到改进后约 6 m/s,有利于将硅熔体表面蒸发出的 SiO₂ 更快带走,减少了 SiO₂ 在石英坩埚内壁面和热屏外壁面的沉积。即使有部分 SiO₂ 在流动弯道处沉积,由于流道开口面积减小, SiO₂ 重新落入熔体的概率也减小。

4.2 改进后的结晶速率

结晶速率 V_{crys} 取决于晶体和熔体热流量的差值:

$$V_{\text{crys}} = \frac{1}{\rho_{\text{crys}}} H \left(\rho_{\text{crys}} \frac{\partial T_{\text{crys}}}{\partial n} - \rho_{\text{melt}} \frac{\partial T_{\text{melt}}}{\partial n} \right) \quad (1)$$

其中 ρ_{crys} 为晶体密度, H 为潜热, λ_{crys} 、 λ_{melt} 分别为晶体和熔体的导热系数, T_{crys} 、 T_{melt} 分别为晶体和熔体的温度, $\partial T_{\text{crys}} / \partial n$ 、 $\partial T_{\text{melt}} / \partial n$ 分别为结晶前沿晶体和熔体的温度梯度。为增大结晶速率, 应增大 $\partial T_{\text{crys}} / \partial n$, 降低 $\partial T_{\text{melt}} / \partial n$ 。

图 4 和图 5 分别为改进前后晶体和熔体沿轴线的温度分布。由图 4 可知, 改进后液固界面处晶体的温度梯度 $\partial T_{\text{crys}} / \partial n$ 较改进前增大; 由图 5 可知, 改进后液固界面处熔体的温度梯度 $\partial T_{\text{melt}} / \partial n$ 基本不变。根据方程 (1), 改进后结晶速率增大, 即拉速可以相应提高。

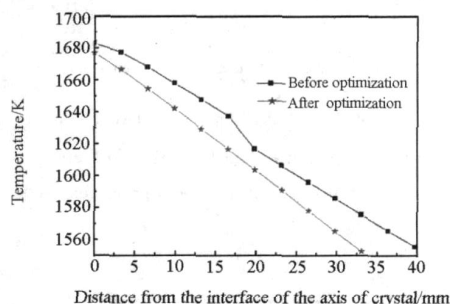


图 4 改进前后沿晶体轴线上的温度分布

Fig. 4 Temperature distribution before and after optimization on the axis of the crystal

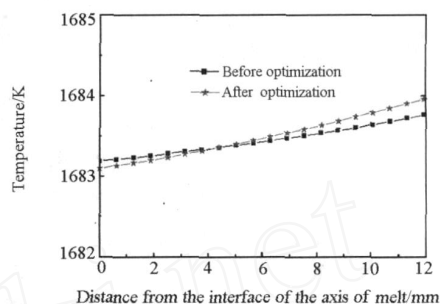


图 5 改进前后沿熔体轴线上的温度分布

Fig. 5 Temperature distribution before and after optimization on the axis of the melt

4.3 改进后晶体中的应力分布

在高生长速率时晶体的温度梯度增大, 造成热应力增大, 这将导致位错形成的概率增大。因此, 改进后的晶体的热应力应该不大于改进前, 或小于临界热应力 (Von Mises stress)。

图 6 为晶体在 600 mm 高度时改进前后的热应力分布图。改进后的晶体应力比改进前略高, 但不大于临界热应力 (2.5×10^7 Pa)^[15]。因此, 可以进一步提高拉速, 而不会引起大的应力增加。在改进后的系统中将拉速提高 35%, 得到的应力分布如图 6(c) 所示。晶体温度梯度增加, 导致更高的热应力, 但未超过临界值。通过上述改进, 生长速率至少可提高 35%。

4.4 改进后熔体中的温度分布

在单晶炉优化过程中, 熔体自由表面的温度分布和熔体与石英坩埚界面的温度分布对晶体质量有较大影响。其原因为: (1) 如果熔体自由表面温度降低幅度过大, 会引起熔体过冷, 导致胞状晶或树枝晶生长。(2) 单晶硅中的氧杂质可大大降低太阳能电池的效率, 因此控制单晶硅中氧杂质的含量至关重要。氧杂质一方面来自熔体硅与石英坩埚反应产生的 SiO_2 , 另一方面来自多晶硅原料, 而前者是氧杂质的主要来源。因此在保证熔体内各点温度高于熔点的同时, 应尽量避免石英坩埚与熔体的界面温度过热。

图 7 和图 8 分别为改进前后熔体的自由表面温度分布和熔体与石英坩埚界面处的温度分布。可以看出, 熔体的平均自由表面温度, 改进后比改进前高约 4℃, 可以有效避免熔体过冷。而熔体与石英坩埚界面处的温度, 靠近坩埚底部中心约 50 mm 这一小范围内, 改进后比改进前平均温度增加约 5℃, 这一区域不利于氧浓度的控制; 其余大部分区域改进后比改进前温度降低, 最大降幅达 8℃。因此改进后有利于降低熔体中的氧浓度。

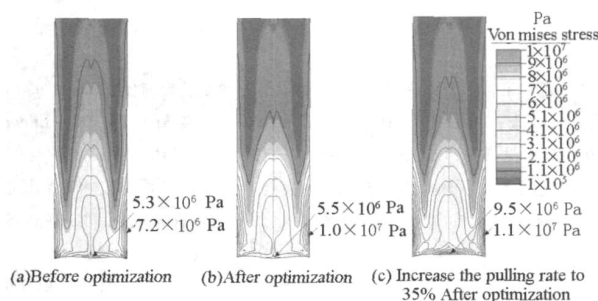


图 6 晶体 600 mm 高时改进前后的热应力分布图

Fig. 6 Thermal stress distributions in the crystal of 600 mm height computed before and after optimization

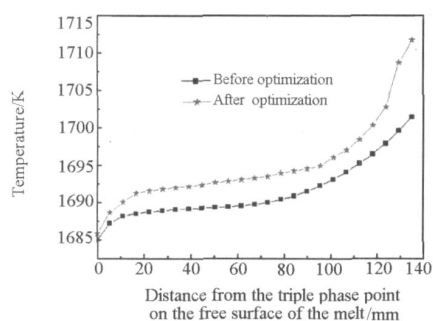


图 7 改进前后熔体自由表面温度分布
Fig. 7 Temperature distributions before and after optimization on the melt free surface

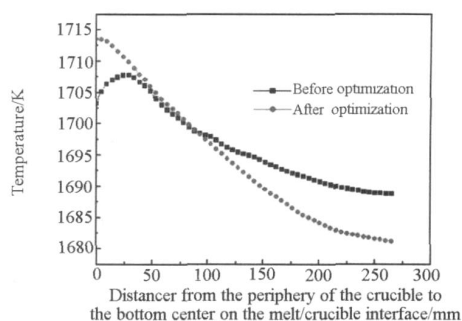


图 8 改进前后熔体/坩埚界面的温度分布
Fig. 8 Temperature distributions before and after optimization on the melt/crucible

5 结 论

在 CZ 法晶体生长中,为了提高生长速率并降低能耗,对导流筒、热屏和底部侧壁炭毡进行了优化。利用晶体生长专业模拟软件 CGSim,对优化前后的热场进行了数值模拟。模拟结果显示,改进后与改进前相比:(1)晶体的轴向温度梯度增大,而熔体的轴向温度梯度基本不变,因此拉速可以提高;(2)氩气离开熔体自由表面的流速增大,因而降低了 SiO₂在壁面沉积并落入熔体的概率;(3)熔体自由表面温度略有升高,可以有效避免熔体过冷。而石英坩埚壁面处大部分区域的温度降低,因此有利于降低熔体中的氧浓度;(4)晶体中的热应力未超过临界值,因此结晶速率可至少提高 35%,而不增加发生宏观位错的概率。

参 考 文 献

- [1] 高宇,周旗钢,戴小林,等.热屏和后继加热器对生长 $\phi 300$ mm 硅单晶热场影响的数值分析[J].人工晶体学报,2007,36(4):832-836.
Gao Y, Zhou Q G, Dai X L, et al Numerical Analysis of the Effects of Heat Shield and Successor Heater on Heat Field of $\phi 300$ mm Si Single Crystal[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2007, 36(4): 832-836 (in Chinese).
- [2] 任丙彦,刘彩池,张志成,等.大直径直拉硅单晶炉热场的改造及数值模拟[J].人工晶体学报,2000,29(4):381-385.
Ren B Y, Liu C C, Zhang Z C, et al Improvement and Numeric Simulation for Heat Zone in Large-diameter Si Single Crystals Furnace[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2000, 29(4): 381-385 (in Chinese).
- [3] 任丙彦,褚世君,吴鑫,等. $\phi 200$ mm 太阳能电池用直拉硅单晶生长中导流系统的研究[J].半导体学报,2008,29(9):1790-1793.
Ren B Y, Chu S J, Wu X, et al A Guide System in $\phi 200$ mm CZ-Si Growth[J]. *Journal of Semiconductors*, 2008, 29(9): 1790-1793 (in Chinese).
- [4] Huang L Y, Lee P C, Hsieh C K, et al On the Hot-zone Design of Czochralski Silicon Growth for Photovoltaic Applications[J]. *J. Crystal Growth*, 2004, 261: 433-443.
- [5] Smimova O V, Dumev N V, Shandrakova K E, et al Optimization of Furnace Design and Growth Parameters for Si CZ Growth, Using Numerical Simulation[J]. *J. Crystal Growth*, 2008, 310: 2185-2191.
- [6] 王学锋,高宇,戴小林,等.液面位置对 $\phi 300$ mm 硅单晶固液界面形状影响的数值计算[J].人工晶体学报,2008,37(6):1571-1574.
Wang X F, Gao Y, Dai X L, et al Numerical Simulation of Effect Melt Level on the Interface Shape during $\phi 300$ mm Silicon Single Crystal Growth[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2008, 37(6): 1571-1574 (in Chinese).
- [7] Yu H P, Sui Y K, An G P, et al Analysis of Various Magnetic Fields Effects on the Transport of Momentum, Heat in a Large Silicon Crystal Growth[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2008, 37(5): 1073-1087.
- [8] Yu H P, Sui Y K, Wang J, et al Numerical Simulation of the Natural Convection Influence on Silicon Single Crystal by CZ[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2006, 35(4): 696-701.
- [9] Sim B C, Jung Y H, Lee J E, et al Effect of the Crystal-melt Interface on the Grown-in Defects in Silicon CZ Growth[J]. *J. Crystal Growth*, 2007, 299: 152-157.
- [10] Jana S, Dost S, Kumar V, et al A Numerical Simulation Study for the Czochralski Growth Process of Si Under Magnetic Field[J]. *International Journal of Engineering Science*, 2006, 44: 554-573.

(下转第 544 页)

European Ceramic Society, 2006, **26** (13): 2669-2676.

- [2] Dong Y C, Liu X Q, Ma Q L, et al Preparation of Cordierite-based Porous Ceramic Micro-filtration Membranes Using Waste Fly Ash as the Main Raw Materials[J]. *Journal of Membrane Science*, 2006, **285** (1/2): 173-181.
- [3] Li Q, Zhong S H. Preparation and Characterization of the Kieselguhr-mullite Composite Ceramic Membrane Support[J]. *Chinese Journal of Catalysis*, 1999, **20** (1): 41-44.
- [4] Vasconcelos P V, Labrincha J A, Ferreira J M F. Permeability of Diatomite Layers Processed by Different Colloidal Techniques[J]. *J. Eur Ceram. Soc.*, 2000, **20** (3): 201-207.
- [5] Kakam y, Sano H. Tourmaline Composite Grains and Apparatus Using Them [P]. US patent: 6034013: 2000-03-18.
- [6] Nakamura T, Kubo T. The Tourmaline Group Crystals Reaction with Water[J]. *J. Ferroelectrics*, 1992, **137** (1): 13-31.
- [7] Ji Z J, Jin Z Z, Liang J S, et al Observation of Electric Dipole on Polar Crystalline Tourmaline Granule[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2002, **31** (5): 503-508.
- [8] Dong F Q, He D L, Yuan C L. The Environmental Functional Property and Trends of Application of Tourmaline[J]. *Functional Materials*, 2005, **10** (36): 1485-1488.
- [9] Zhou J, Zhang X Z, Li J K, et al Study on the Cordierite Honeycomb Ceramics Matrix with Gas Filtration[J]. *China Ceramics*, 2006, **42** (1): 3-7.
- [10] Wu Z D, Zhou Z F, Wang W J, et al Preparation of Micron Level Porous Al_2O_3 Ceramics[J]. *Jiangsu Ceramics*, 1999, **15** (3): 23-26.
- [11] Meng J P, Liang J S, Ding Y. Effects of Mineral Tourmaline Particles on Photo-catalytic Activities of RE/ TiO_2 Compos Thin Films[J]. *J. Rare Earth*, 2004, **22** (S2): 101-105.
- [12] Cao H L, Zhang L, Lu G Y. Absorption and Degradation of Organic Dye stuff Like Methylene Blue by Tourmaline[J]. *Guangdong Chemical Industry*, 2007, **34** (1): 30-34.

(上接第 528 页)

- [11] Kasap S, Capper P. Springer Handbook of Electronic and Photonic Materials[M]. New York: McGraw-Hill, 2006: 255-269.
- [12] Domberger E, Tomzig E, Seidl A, et al Thermal Simulation of the Czochralski Silicon Growth Process by Three Different Models and Comparison with Experimental Results[J]. *J. Crystal Growth*, 1997, **180**: 461-467.
- [13] Brown R A. Theory of Transport Processes in Single Crystal Growth from the Melt[J]. *Ceramic Journal Review*, 1988, **34** (6): 881-911.
- [14] 阙端麟, 陈修治. 硅材料科学与技术 [M]. 浙江: 浙江大学出版社, 2000: 193-218.
- [15] STR Group. CGSim Flow Module Theory Manual, v. 8. 12 [DB/CD]. St. Petersburg, Russia: Richmond VA, 2007 [2009-7-17]. <http://www.semitech.us>
- [16] STR Group. CGSim Material Data base, v. 8. 12 [DB/CD]. St. Petersburg, Russia: Richmond VA, 2008 [2009-7-17]. <http://www.semitech.us>

(上接第 533 页)

- [16] 肖进新, 赵振国. 表面活性剂应用原理 (第三版) [M]. 北京: 化学工业出版社, 2003: 129-129.
- [17] 倪杰, 周根陶, 曲晓飞. 卵磷脂与双甘氨酸对碳酸钙变体和表面微结构的影响 [J]. 高校地质学报, 2007, **13** (4): 644-650.
Ni J, Zhou G T, Qu X F. Effect of Phosphatidylcholine and Glycylglycine on Polymorph and Surface Microstructure of Calcium Carbonate[J]. *Geological Journal of China Universities*, 2007, **13** (4): 644-650 (in Chinese).
- [18] 王静梅, 姚松年. 壳聚糖-氨基酸体系中碳酸钙模拟生物矿化的研究 [J]. 无机化学学报, 2001, **17** (2): 202-208.
Wang J M, Yao S N. The Study of Mimetic Biomimetalization of Calcium Carbonate in Some Amino Acid System [J]. *Chinese Journal of Inorganic Chemistry*, 2001, **17** (2): 202-208 (in Chinese).
- [19] Addadi L, Joester D, Nudelman F, et al Mollusk Shell Formation: A Source of New Concepts for Understanding Biomimetalization Processes [J]. *Chem. Eur. J.*, 2006, **12**: 980-987.