

融液対流及び坩堝半径がシリコン多結晶育成に及ぼす影響についての考察

中野, 智
九州大学応用力学研究所技術室

<https://hdl.handle.net/2324/14016>

出版情報：九州大学応用力学研究所技術職員技術レポート．9, pp.37-45, 2008-03. Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University

バージョン：

権利関係：

融液対流及び坩堝半径がシリコン多結晶育成に及ぼす影響についての考察

応用力学研究所技術室 中野 智

1. はじめに

温暖化による地球の環境悪化が深刻なものになっている現在、二酸化炭素を排出しないという利点を持つ太陽光発電が注目されている。この太陽光発電に使用される太陽電池の中で、現在最も使用されているものは、他のタイプに比べて発電効率が優れており、安価なため量産が容易である多結晶シリコン太陽電池である。多結晶シリコン太陽電池の製造法としては、一方向性凝固法と呼ばれる方法が多用されている。しかし、この多結晶シリコン太陽電池作製の大きな問題点は、デバイス特性を劣化させる転位の発生である。この転位などの結晶欠陥の分布と、結晶中の応力、結晶温度勾配、固液界面形状は密接に関係しており、結晶中の応力の値が高い領域では、多くの転位が発生することが報告されている¹⁾。Fig. 1に、固液界面形状と応力との関係を示した図を示す。固液界面形状の凹凸の度合いが大きい場合、面内温度分布の不均一性によって応力が生じ、転位が発生する^{2), 3)}。次に結晶温度勾配と応力の関係を表すFig. 2を示す。図より、結晶温度勾配が大きい部分では、応力も増大していることがわかる⁴⁾。このように、固液界面形状の凹凸の度合いや結晶温度勾配が、結晶の品質に多大な影響を及ぼすことがわかっている。よって、転位の発生に影響を及ぼす結晶中の応力、そしてこの応力の分布や転位の発生と密接な関係のある融液・結晶の温度分布や固液界面形状を制御することは、高品質、高効率な太陽電池を作製するために大変重要である。しかし、この一方向性凝固法を用いた結晶成長過程において、融液の流れや温度分布を観察することは大変困難である。そこで数値計算を用いたシミュレーションが重要視されている。

結晶成長シミュレーションには、一般的に市販の数値計算コードが用いられている。しかし、ほとんどのものが融液内の対流を考慮していない、伝熱計算のみのものである。よって融液内対流の与える影響が計算結果に反映されていない。また、今まで我々が行ってきた数値解析では、Fig. 3(a)に示すようなアスペクト比が1対1の坩堝を用いた炉を使用してきた。しかし実際の製造現場で用いられている坩堝は、半径方向に長い、異なるアスペクト比のものである。更に、坩堝半径と転位密度が大きく関係していることも既に報告されている³⁾。そこで、融液内対流を考慮した場合と考慮しない場合、及び坩堝や炉の半径を2倍にして、異なるアスペクト比にした場合における、融液の流速分布、固液界面形状、結晶温度勾配に及ぼす影響を数値解析により求めることを今回の目的とした。

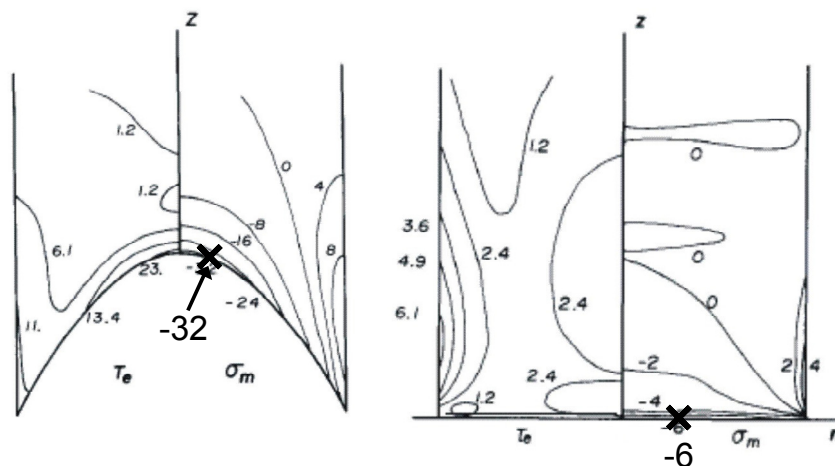


Fig. 1 固液界面形状と応力との関係を示した図²⁾

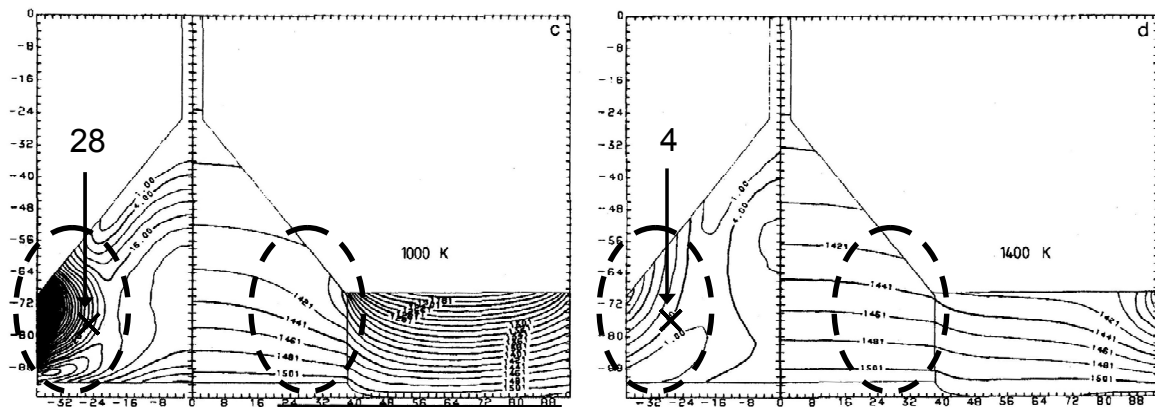


Fig. 2 結晶温度勾配と応力の関係を示した図⁴⁾

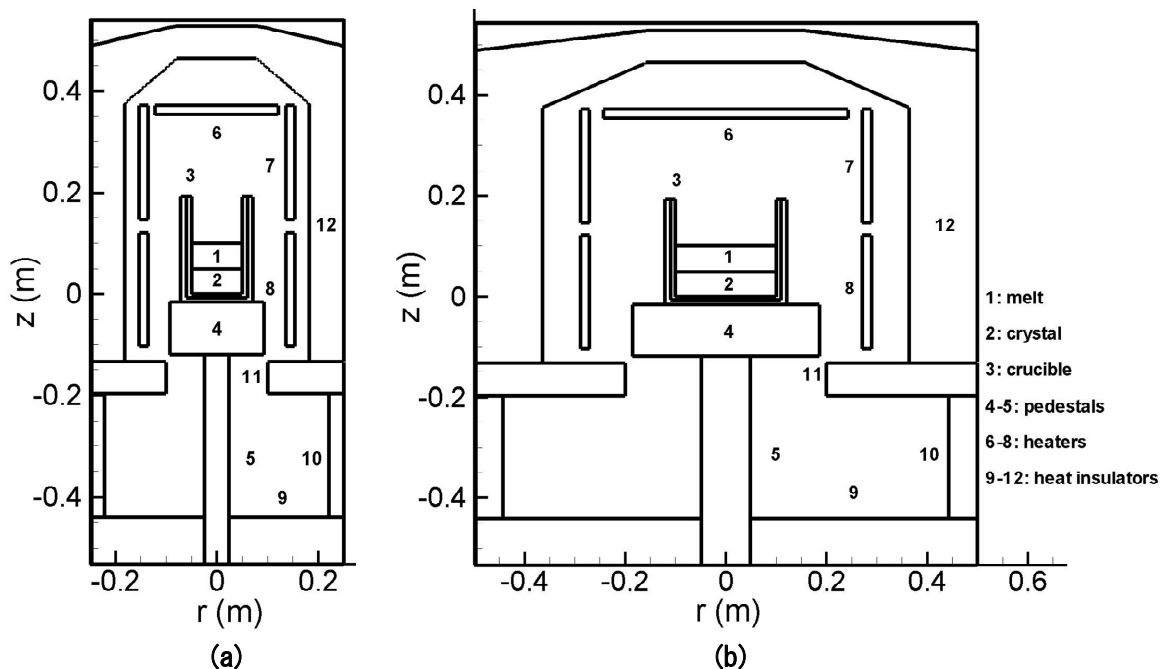


Fig. 3 (a) 従来の炉 (b) 半径を2倍にした炉 各炉内構成図

Fig. 3 に今回用いた炉内構成図を示す。(a)は従来の炉、(b)は半径長さを2倍にした炉である。ヒーターはそれぞれ6、7、8の3箇所を設置しており、6を天井部ヒーター(Heater1)、7を上部ヒーター(Heater2)、8を下部ヒーター(Heater3)と呼ぶことにする。固液界面の位置は融液のz軸垂直方向50mmの高さに設定している。

坩堝内融液を加熱するために使用するヒーターは、

(ア) : 天井部ヒーター(Heater1)と上部ヒーター(Heater2)を使用した場合

(イ) : 天井部ヒーター(Heater1)と下部ヒーター(Heater3)を使用した場合

という2通りの組み合わせを用いた。

2. 計算モデル

2.1 一方向性凝固法の2次元モデル

一方向性凝固法に使用する小型の炉の構成図を Fig. 3(a)に、半径長さを2倍にした炉の構成図を Fig. 3(b)に示す。炉の形状は軸対称を仮定している。Fig. 3に示すように、炉の構成は12のブロックにわけられており、それぞれグリッドで区切られている。計算をより正確に行うために、境界付近はグリッドをより細かく切ることが必要になってくる。

2.2 支配方程式

炉内の熱伝達のグローバルモデルは、坩堝内にある融液対流による熱伝達や炉内を構成しているすべてのものの熱伝達、輻射による熱伝達を含めて考慮してある。また、炉内のガスの流れの効果は無視することとし、融液は非圧縮の状態下と仮定して考えている。

この条件下において、坩堝内の融液の熱の流れに対する連続の式、運動方程式、エネルギー方程式は、それぞれ式(1), (2), (3)に示す。

$$\nabla \cdot \vec{V} = 0, \quad (1)$$

$$\rho \vec{V} \cdot \nabla \vec{V} = -\nabla \rho + \nabla \cdot \left[\mu (\nabla \vec{V} + \nabla \vec{V}^T) \right] - \rho \vec{g} \beta (T - T_0), \quad (2)$$

$$\rho c \vec{V} \cdot \nabla T = \nabla \cdot (\lambda \nabla T), \quad (3)$$

| | |
|------------------------------|------------------------------------|
| \vec{V} : 速度 (m/s) | \vec{g} : 重力加速度 (m/s^2) |
| ρ : 密度 (kg/m^3) | μ : 粘性係数 ($kg/m \cdot s$) |
| T : 融液温度 (K) | T_0 : 基準温度 (融点) (K) |
| c : 熱容量 ($J/kg \cdot K$) | λ : 熱伝導率 ($W/m \cdot K$) |
| β : 膨張係数 ($1/K$) | |

輻射による熱伝達は、Fig. 3 炉内の熱伝達の主なるものである。炉内の輻射に関する構造物での熱伝達のモデル化が、グローバルシミュレーションで最も重要なものの1つである。炉内構造物の表面温度 $T(\vec{x})$ と熱流束 $q(\vec{x})$ の関係式を式(4)に示す。

$$\begin{aligned} \frac{q(\vec{x})}{\varepsilon(\vec{x})} - \int_{\vec{x}' \in \partial V} K(\vec{x}, \vec{x}') \frac{1 - \varepsilon(\vec{x}')}{\varepsilon(\vec{x}')} q(\vec{x}') dS' \\ = \sigma T^4(\vec{x}) - \int_{\vec{x}' \in \partial V} K(\vec{x}, \vec{x}') \sigma T^4(\vec{x}') dS', \end{aligned} \quad (4)$$

| | |
|--------------------------------|--|
| $q(\vec{x})$: 熱流束 (W/m^2) | σ : ボルツマン定数 ($W/m^2 \cdot K^4$) |
| $\varepsilon(\vec{x})$: 放射率 | $T(\vec{x})$: 表面温度 (K) |
| $K(\vec{x}, \vec{x}')$: 形態係数 | |

式(5)に示す $K(\vec{x}, \vec{x}')$ は、 \vec{x} と \vec{x}' 間の形態係数である。 \vec{x} と \vec{x}' は、炉内構造物の表面上の極小要素である。 dS と dS' は、 \vec{x} と \vec{x}' の極小の面積を表す。 ∂V は、炉内輻射構造物の表面積を表している。 dS と dS' がお互い見えている場合、 $K(\vec{x}, \vec{x}')$ は下記方程式を満たす。 \vec{n} と \vec{n}' は、それぞれ dS と dS' からの単位法線ベクトルである。

$$K(\vec{x}, \vec{x}') = - \frac{[(\vec{x} - \vec{x}') \cdot \vec{n}][(\vec{x} - \vec{x}') \cdot \vec{n}']}{\pi [(\vec{x} - \vec{x}') \cdot (\vec{x} - \vec{x}')]^2}, \quad (5)$$

dS と dS' がお互い見えていない場合、式(6)のようになる。

$$K(\bar{x}, \bar{x}') = 0 \quad (6)$$

3. 結果および考察

3.1 融液対流を考慮した場合と考慮しない場合における、結晶温度勾配とヒーター電力の関係

Fig. 4(a)に示すように、坩堝の中心位置 $r=0$ から z 軸垂直方向における結晶部分の温度勾配を求めた。温度勾配とヒーターに加える電力の割合との関係を表したグラフを Fig. 4(b)に示す。横軸のヒーターに加える電力の割合は、天井部ヒーター(Heater1)に加える電力の割合を示している。(ア)の場合、天井部ヒーターに加える電力の割合を増加させても、結晶の温度勾配に大きな変化は見られない。これに対して(イ)の場合、天井部ヒーターに加える電力の割合の増加に従って、結晶の温度勾配も増加していることがわかる。また、対流を考慮した場合と考慮しない場合を比較した結果、対流を考慮した場合の方が結晶温度勾配は低減し、最大で3.4%の差となった。

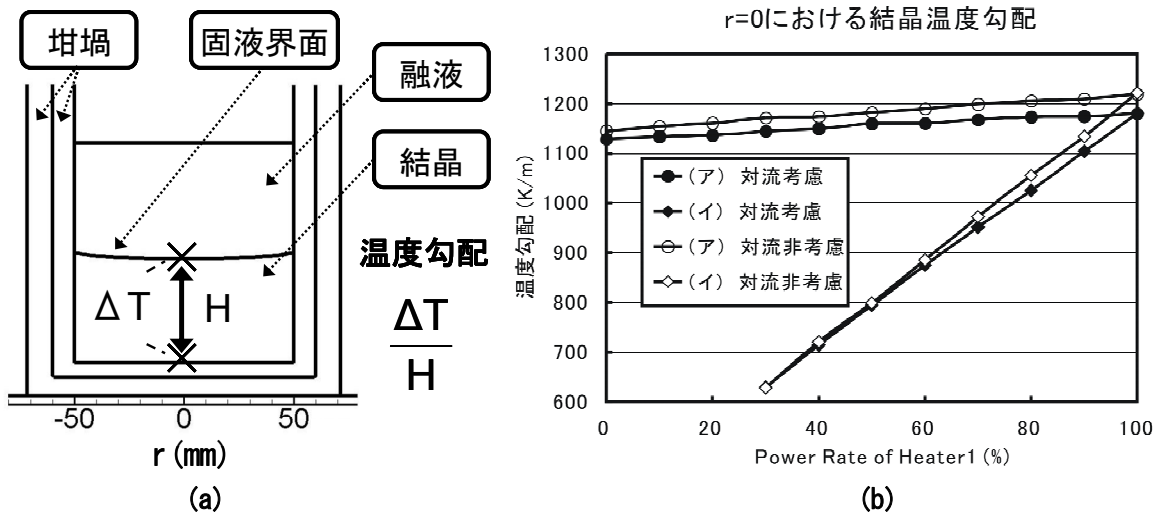


Fig. 4 $r=0$ における z 軸垂直方向の結晶温度勾配のグラフ

3.2 融液対流を考慮した場合と考慮しない場合における、固液界面形状とヒーター電力の関係

Fig. 5(a)に示すように、坩堝の中心位置 $r=0$ と、固液界面の高さが最も低い位置における、 z 軸垂直方向の固液界面までの高さの差を計算し、固液界面形状の変化を求めた。このときの固液界面形状の変化と、天井部ヒーター(Heater1)に加える電力の割合との関係を表すグラフを Fig. 5(b)に示す。 z 軸の正方向を固液界面までの高さの差の正方向とする。つまり、固液界面までの高さの差が正の場合は固液界面形状が凸、負の場合は凹の形状を示すものとする。(ア)の場合、天井部ヒーターに加える電力の割合を増加させても、固液界面の凹の形状にほとんど変化は見られない。これに対して(イ)の場合は、天井部ヒーター(Heater1)に加える電力の割合を増加させるに従って、固液界面形状はほぼ平坦な形状から凹の形状へと変化していくのがわかる。次に、対流を考慮した場合と考慮しない場合を比較した結果、(ア)、(イ)のヒーターの組み合わせに関わらず、対流を考慮しない場合の方が固液界面の凹の度合いが増大し、最大46%の差となった。この結果について以下のような考察を行った。Fig. 5(b)より、(イ)のヒーターの組み合わせを用いたときの、対流を考慮した場

る。このとき、融液全体の温度は均一に近づき、融液下部での温度差が減少するため、固液界面近傍の対流の流速も減少する。よって、固液界面形状は対流を考慮した場合と考慮しない場合で、ほぼ同じ形状になると考えられる。これに対して、対流を考慮した場合と考慮しない場合で、固液界面形状の高さの差が最も大きい場合 (Power rate of Heater1:100%)、Fig. 6(b) に示すように、熱流束が垂直上方向のみから与えられている。このとき、融液全体の温度は不均一となり、融液下部での温度差が増大するため、固液界面近傍の対流の流速も増大する。この流速が増大した固液界面近傍の対流の影響で、固液界面形状の凹の度合いが低減されると考えられる。

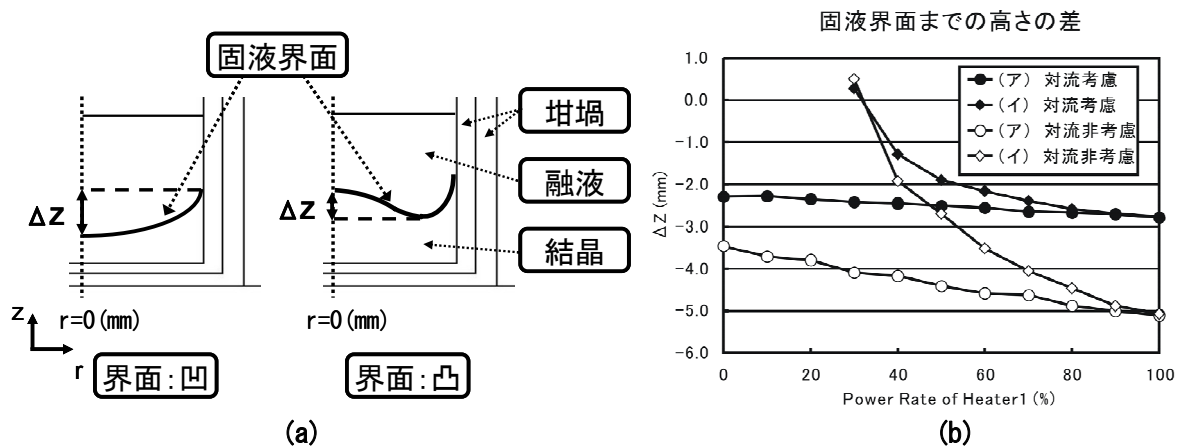


Fig. 5 $r=0$ における z 軸垂直方向の固液界面までの高さの差のグラフ

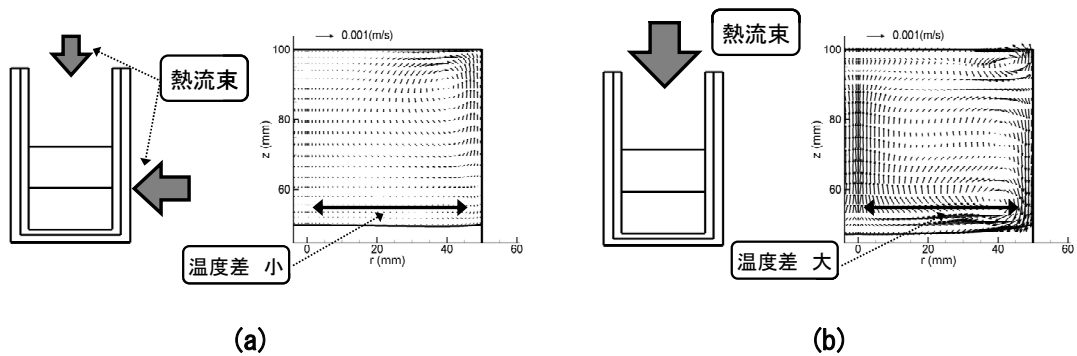


Fig. 6 対流を考慮した場合と考慮しない場合において、
 (a) 固液界面形状の差がほとんどない場合 (Power rate of Heater1:30%)
 (b) 固液界面形状の差が大きい場合 (Power rate of Heater1:100%)
 それぞれの場合における熱流束の方向と融液内流速分布図

3.3 半径2倍の炉を用いた場合の結晶温度勾配とヒーター電力の関係

3.1 同様、坩堝の中心位置 $r=0$ から z 軸垂直方向における結晶部分の温度勾配を求めた。結晶温度勾配を求めた部分を示す図、及び結晶温度勾配と天井部ヒーター(Heater1)に加える電力の割合との関係を表したグラフを Fig. 7 に示す。グラフは、従来の炉で (ア) のヒーターの組み合わせを用いた場合 (Case1)、従来の炉で (イ) のヒーターの組み合わせを用いた場合 (Case2)、半径2倍の炉で (ア) のヒーターの組み合わせを用いた場合 (Case3)、半径2倍の炉で (イ) のヒーターの組み合わせを用いた場合 (Case4) それぞれの結晶温度勾配の変化を表している。Case1 と Case3 を比較した場合、天井部ヒーターに加える電力の割合を増加させても結晶温度勾配に大きな変化は見られない。次に Case2 と Case4 を比較した場合、天井部ヒーターに加える電力の割合を増加させるに従って、結晶温度勾配も増加した。しかし、Case1 と Case3 を比較した場合、Case2 と Case4 を比較した場合共に、半径2倍の炉を用いた方が、結晶温度勾配が大幅に低下していることがわかる。この原因に対して以下のような考察を行った。Fig. 8 は、(ア) のヒーターの組み合わせを用いた場合の、従来の炉と半径2倍の炉それぞれにおける、固液界面に垂直方向の熱流束を示したグラフである。半径2倍の炉を用いた場合、固液界面に垂直方向の熱流束が、従来の炉を用いた場合と比較して約6割減少していた。この結果は、(イ) のヒーターの組み合わせを用いた場合も同様であった。この熱流束の減少が、結晶温度勾配の低減に影響を与えていると考えられる。

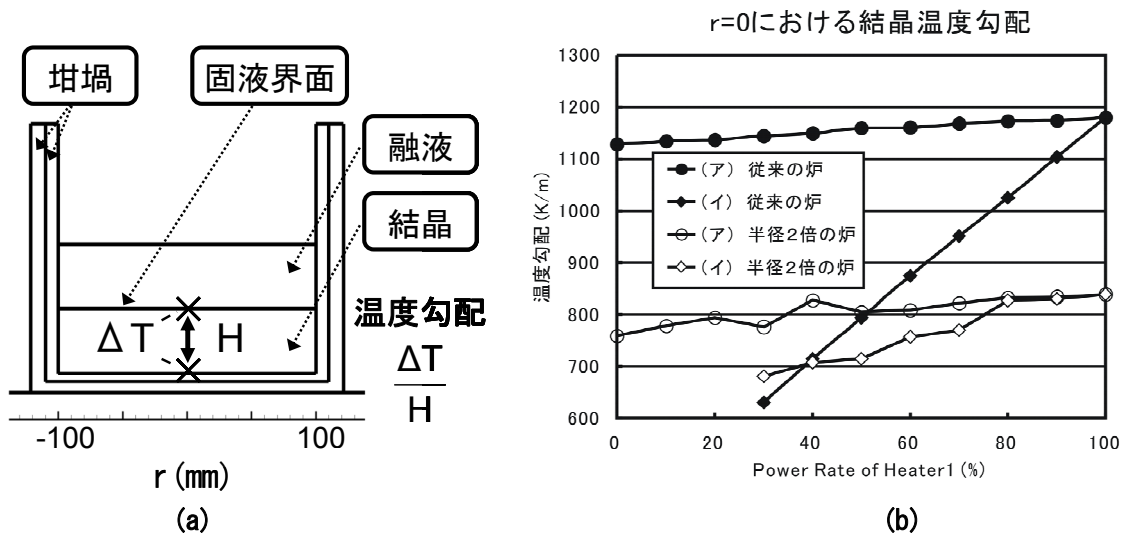


Fig. 7 半径2倍の炉を用いた場合の $r=0$ における z 軸垂直方向の結晶温度勾配のグラフ

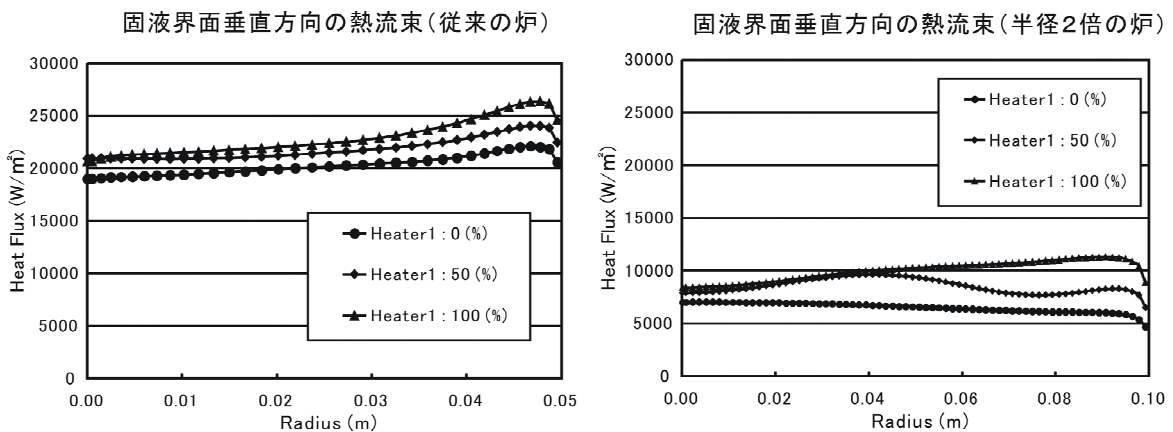


Fig. 8 従来の炉と半径を2倍にした炉それぞれにおける、固液界面に垂直方向の熱流束

3.4 半径2倍の炉を用いた場合の固液界面形状の変化とヒーター電力の関係

3.2 同様、坩堝の中心位置 $r=0$ と、固液界面の高さが最も低い位置における、 z 軸垂直方向の固液界面までの高さの差を計算し、固液界面形状の変化を求めた。固液界面形状を求めた方法を示す図、及び固液界面形状の変化と天井部ヒーター(Heater1)に加える電力の割合との関係を表すグラフを Fig. 9 に示す。グラフは、従来の炉で (ア) のヒーターの組み合わせを用いた場合 (Case5)、従来の炉で (イ) のヒーターの組み合わせを用いた場合 (Case6)、半径2倍の炉で (ア) のヒーターの組み合わせを用いた場合 (Case7)、半径2倍の炉で (イ) のヒーターの組み合わせを用いた場合 (Case8) それぞれの固液界面までの高さの差を表している。Case5 と Case7 を比較した場合、天井部ヒーターに加える電力の割合を増加させても、固液界面形状に大きな変化は見られない。次に Case6 と Case8 を比較した場合、天井部ヒーターに加える電力の割合を増加させるに従って、Case6 の場合は水平から凹へ、Case8 の場合は凸から水平へと変化しているのがわかる。また、従来の炉を用いた場合は、固液界面形状はほぼ凹の形状をしているが、半径2倍の炉を用いた場合は、水平か凸の形状をしており、最大で 3.8mm の差となった。この結果に対して以下のような考察を行った。3.2 で既に言及しているが、Fig. 10 に示すように、熱流束が垂直上方向と水平方向の二方向から与えられている場合、融液下部での温度差は減少し、固液界面近傍の対流の流速は減少する。また、熱流束が垂直上方向のみから与えられている場合、融液下部での温度差が増大し、固液界面近傍の対流の流速が増大する。しかし、従来の炉と半径2倍の炉とを比較した場合、半径2倍の炉の方が融液量が多いため、融液下部での半径方向の温度差がより増大すると考えられる。このため、(ア)、(イ) のヒーターの組み合わせに関わらず、半径2倍の炉の方が固液界面近傍での対流の流速がより増大し、固液界面形状の凹の度合いがより低減されると考えられる。

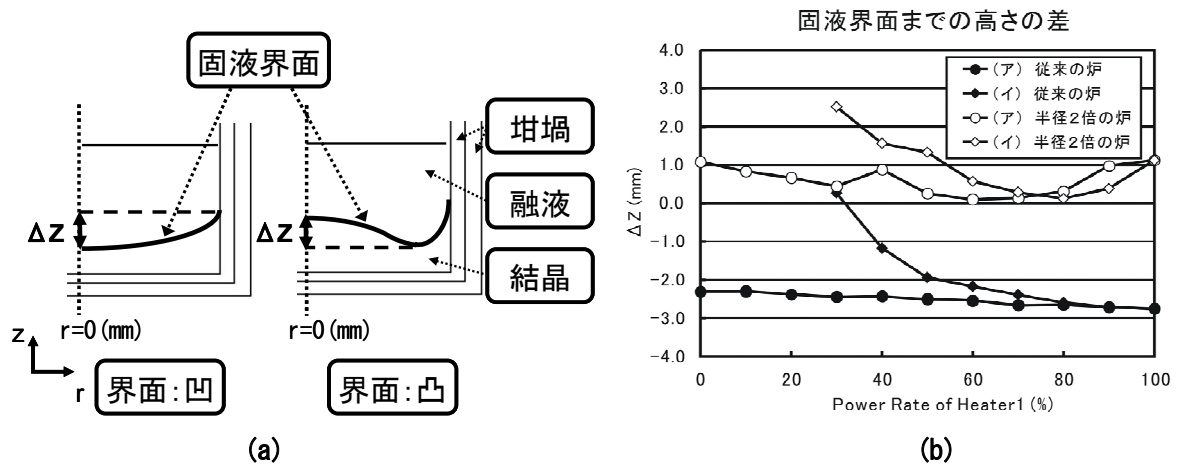


Fig. 9 半径2倍の炉を用いた場合の $r=0$ における z 軸垂直方向の固液界面までの高さの差のグラフ

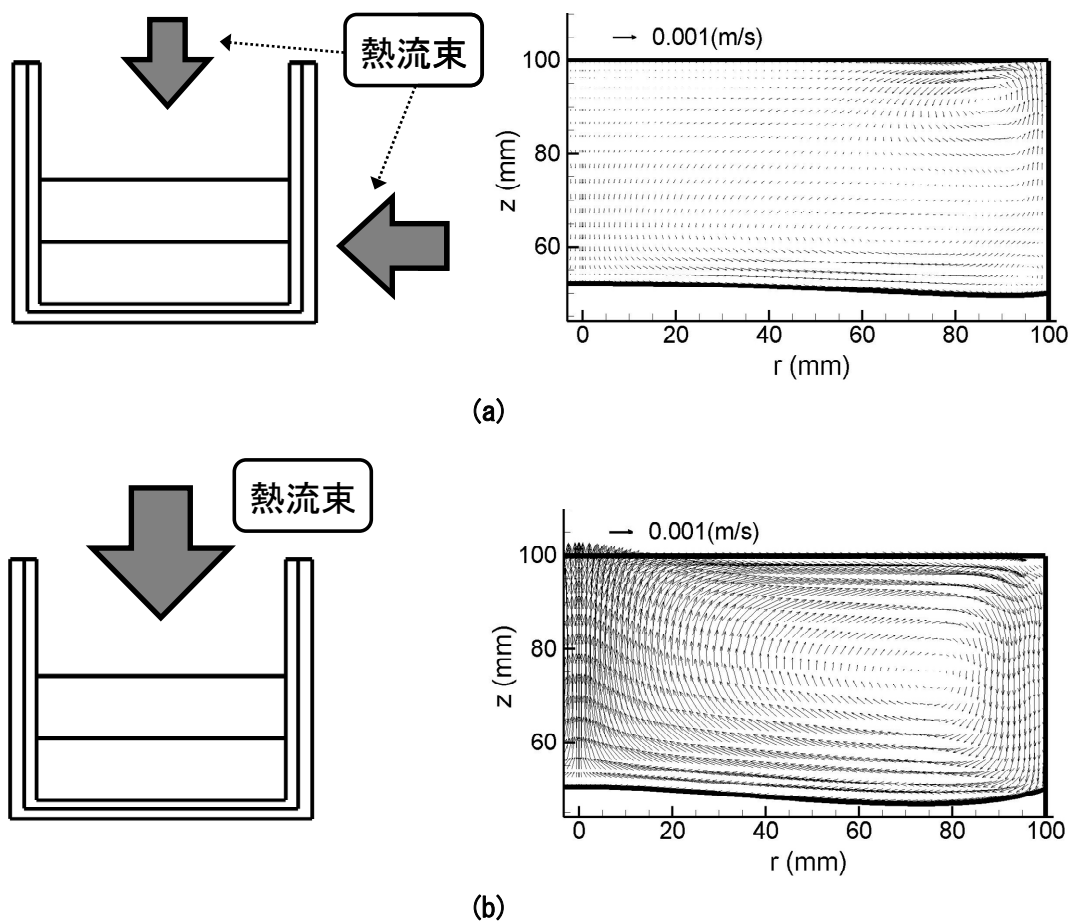


Fig. 10 半径2倍の炉を用いた場合の
 (a) 水平方向からの熱流束が最も大きい場合 (Power rate of Heater1:30%)
 (b) 垂直上方向からの熱流束が最も大きい場合 (Power rate of Heater1:100%)
 それぞれの場合における熱流束と融液内流速分布図

4. まとめ

融液対流を考慮した場合と考慮しない場合、および半径を2倍にして異なるアスペクト比にした場合における、融液の流速分布、固液界面形状、結晶温度勾配に及ぼす影響を数値解析により求めた。その結果、対流を考慮した場合の方が固液界面形状の凹の度合いが最大46%低減され、結晶温度勾配は最大3.5%減少した。よって、数値解析によるシミュレーションを行う場合、対流を考慮することが重要であることがわかった。また、半径2倍の炉を用いた場合、加えるヒーター電力の割合に関わらず、固液界面形状は水平か凸となり、結晶温度勾配は最大33%低減されるということがわかった。よって、今回用いた条件下では、半径2倍の炉を用いた場合の方が、応力・転位の低減に効果があることがわかった。

謝 辞

日頃から終始御指導いただいているナノメカニクス分野 柿本浩一教授、寒川義裕准教授、劉立軍氏、陳雪江氏に、この場をお借りして厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) H. J. Moller, C. Funke, A. Lawrenz, S. Riedel, M. Werner, *Solar Energy Materials & Solar Cells* 72 (2002) 403-416.
- 2) J. C. Lambropoulos, C. N. Delametter, *J. Crystal Growth* 92 (1988) 390-396.
- 3) T. Inoue, T. Matsutomo, M. Yokogawa, K. Fujita, *J. J. A. Crystal Growth (Bulk Growth (II))*, Vol. 18, No. 4, (1991) 494-501.
- 4) G. O. Meduoye, D. J. Bacon, K. E. Evans, *J. Crystal Growth* 108 (1991) 627-636.
- 5) V. V. Voronkov, *J. Crystal Growth* 59 (1982) 625-643.
- 6) T. Abe, H. Harada, J. Chikawa, *Physica* 116B (1983) 139-147.
- 7) L. Liu, S. Nakano, K. Kakimoto, *J. Crystal Growth* 292 (2006) 515-518.
- 8) L. Liu, S. Nakano, K. Kakimoto, *J. Crystal Growth* 282 (2005) 49-59.