

シリコン多結晶育成時における結晶成長速度と炉の 大きさの固液界面形状に与える影響

中野, 智
九州大学応用力学研究所技術室

<https://doi.org/10.15017/17837>

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. 11, pp.23-28, 2010-03. Research
Institute for Applied Mechanics, Kyushu University

バージョン：

権利関係：

シリコン多結晶育成時における結晶成長速度と 炉の大きさの固液界面形状に与える影響

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、燃料補給を必要とせず、二酸化炭素を排出しないという利点を持つ、太陽光発電が急成長を遂げている[1]。これに伴い、太陽電池製造用のSi原料の不足が深刻な問題となっている。このため、太陽電池産業の課題として、Si多結晶の生産性向上とコストの削減が求められており、Si多結晶の大口径化が進んでいる[1]。しかし、直径の増大に従って、太陽電池の変換効率低下の大きな要因となっている転位[2]が増加するということが報告されている[3]。

結晶内部における転位や転位生成の要因である応力の分布は、結晶育成過程における固液界面形状に大きく影響を受けることがすでに報告されている[3,4]。このため、結晶育成過程における固液界面形状を制御することが、結晶の高品質化に重要であることが考えられる。

そこで今回の試みでは、坩堝半径と成長速度を変化させることによって、固液界面形状がどのような影響を受けるかについて、数値計算を用いて検討を行った。

2. 数値計算モデル

数値解析には、本研究室にて開発されたグローバル数値計算コード(PASIST)[5]を用いて計算した。一方向性凝固法に使用する、小型炉の構成図をFig. 1に示す。炉の形状は軸対称を仮定している。炉の構成は、Fig. 1に示すように15のブロックに分かれており、それぞれグリッドで区切られている。Fig. 2に、時間依存の数値計算を行い、固液界面が上昇している途中の、坩堝内融液及び結晶部分の計算格子を示す。計算をより正確に行うた

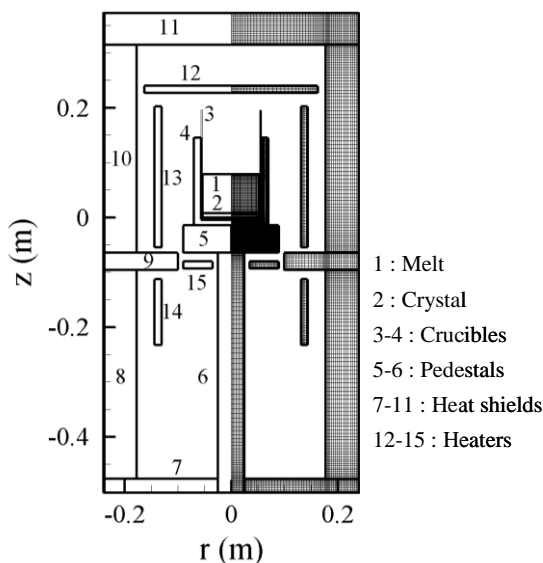


Fig. 1 炉内構成図

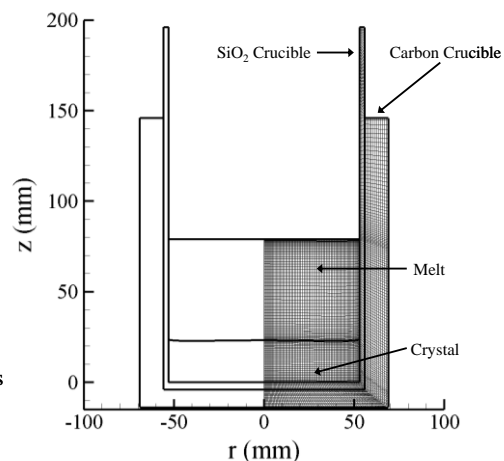


Fig. 2 坩堝内グリッド図

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。この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部材の熱伝達、輻射による熱伝達を含めて考慮している。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、エネルギー方程式をそれぞれ以下に示す。

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

$$\rho \left(\frac{\partial \vec{V}}{\partial t} + \vec{V} \cdot \nabla \vec{V} \right) = -\nabla p + \nabla \cdot \left[\mu (\nabla \vec{V} + \nabla \vec{V}^T) \right] - \rho \bar{g} \beta_T (T - T_m), \quad (2)$$

$$\rho c \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \vec{V} \cdot \nabla T \right) = \nabla \cdot (k \nabla T), \quad (3)$$

\vec{V} , ρ , p , μ , \bar{g} , β_T , c , k は、それぞれ速度、密度、圧力、粘性係数、重力加速度、体膨張係数、熱容量、熱伝導率を示す。輻射による熱伝達は、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 $q(\vec{x})$ の関係式を以下に示す[6]。

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

$q(\vec{x})$, $\varepsilon(\vec{x})$, $K(\vec{x}, \vec{x}')$, σ , $T(\vec{x})$ は、それぞれ熱流束、放射率、形態係数、ボルツマン定数、表面温度を示す。

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。

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

今回用いた小型炉の坩堝半径は54mm、大型炉の坩堝半径は350mmとし、凝固時間は小型炉の場合、6時間、10時間、15時間、大型炉の場合、30時間、37時間、52時間で数値計算を行った。

3. 計算結果

Fig. 3(a)は小型炉、(b)は大型炉における、固液界面形状の凝固時間(成長速度)依存性

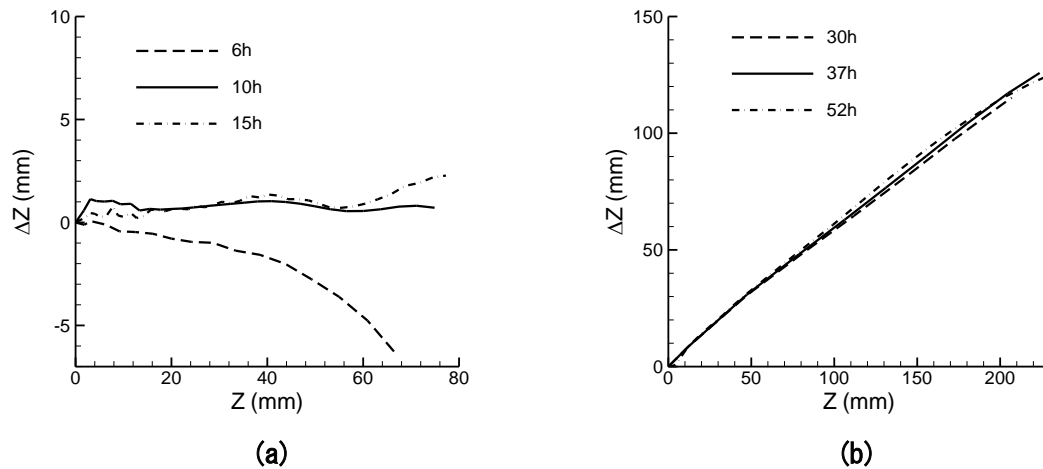


Fig. 3 (a)小型炉、(b)大型炉における、固液界面形状の凝固時間(成長速度)依存性

を示す。 ΔZ は結晶底部から固液界面中心部までの高さ(結晶中心部)と固液界面端部の高さの差をとることによって、固液界面の形状を示している。 ΔZ が正の場合、固液界面形状は凸、負の場合は凹の形状になることを示している。図より、小型炉の場合、凝固時間の増加にしたがって固液界面形状は凹から凸の形状に変化した。これに対して大型炉の場合、凝固時間が増加しても、固液界面形状はほぼ同じ凸の形状のままであった。

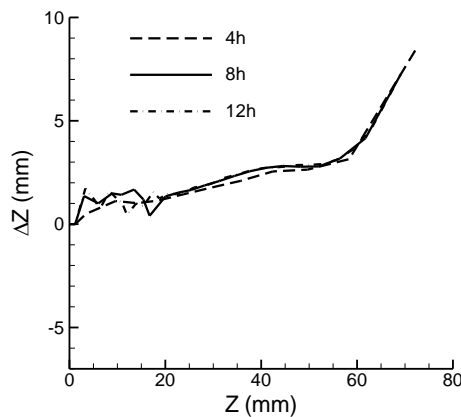


Fig. 4 小型炉における凝固潜熱非考慮の場合での固液界面形状の凝固時間(成長速度)依存性

Fig. 4は、小型炉における凝固潜熱を考慮しない場合での、固液界面形状の凝固時間(成長速度)依存性を示した図である。凝固潜熱を考慮した Fig. 3(a)の場合、固液界面形状は凝固時間(成長速度)の増加にしたがって凹から凸に変化している。これに対して凝固潜熱を考慮しない場合は、固液界面形状は凝固時間(成長速度)を変化させてもほぼ同じ形状になることがわかる。つまり固液界面形状は、凝固潜熱に依存していることがわかる。

$$-k_m \nabla T_m = -k_c \nabla T_c - \rho_c v_g \Delta H. \quad (7)$$

式(7)は、固液界面における熱輸送の式を示している。 k_m , T_m , k_c , T_c , ρ_c , v_g , ΔH はそれぞれ熱伝導率(融液)、温度(融液)、熱伝導率(結晶)、温度(結晶)、熱容量(結晶)、

成長速度、凝固エンタルピーを示す。式(7)の右辺第2項は凝固潜熱を表している。固液界面にて発生した凝固潜熱は、坩堝を通して熱を放出するため、結晶中心部の方が端部より高温となる。これによって、結晶中心部は溶けて融液となるために、固液界面形状は凹の形状となる。また式(7)より、凝固潜熱は成長速度に比例することがわかる。よって、成長速度が増加すると凝固潜熱が増大し、固液界面形状は凹の形状になるということがわかる。つまり、固液界面形状は成長速度に依存する。

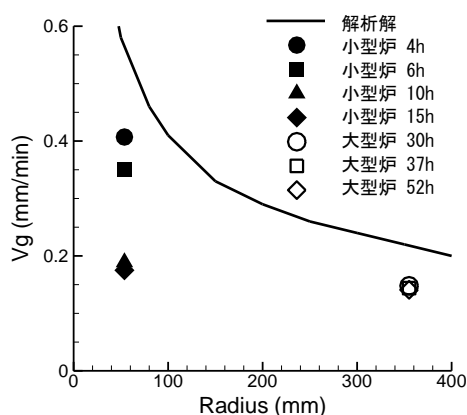


Fig. 5 結晶最大成長速度の坩堝半径依存性

$$V_{\max} = \frac{1}{L\rho_m} \left(\frac{P\sigma\epsilon K_m T_m^5}{2A} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (8)$$

式(8)は結晶の最大成長速度を示している[7]。この式をグラフ化した Fig. 5 は、最大成長速度の坩堝半径依存性を示しており、式(8)をグラフ化、および今回のシミュレーション結果を示したものである。式(8)より得られる Fig. 5 の解析解より、坩堝半径が増加するにしたがって、結晶の最大成長速度は減少している。また、今回用いたシミュレーション結果より、小型炉の場合、最大成長速度は凝固時間によって大きく変化していることがわかる。これに対して大型炉の場合は、最大成長速度は凝固時間が変化してもほとんど同じであった。

4. 考 察

小型炉の場合、凝固時間によって固液界面形状は変化するが、大型炉の場合、凝固時間によって固液界面形状はほとんど変化しなかった。このことに対して、小型炉と大型炉、それぞれの結晶の表面積と体積に着目して比較を行った。表面積は半径の2乗に比例し、体積は半径の3乗に比例する。よって表面積と体積の比は半径に反比例する。このため、半径の長さが増加すると体積の影響が大きくなり、減少すると表面積の影響が大きくなると考えられる。今回用いた小型炉の表面積と体積の比は1:1.6、大型炉の表面積と体積の比は1:7である。よって小型炉は表面積の比が大きく、大型炉は体積の比が大きい。このため、小型炉の場合、周囲からの輻射伝熱の影響が大きいと考えられる。これに対して、大型炉の場合は、輻射伝熱よりも物質内の伝導伝熱の影響が大きいと考えられる。

この考察を確認するために、結晶に出入りしている熱流束に着目した。Fig. 6 は、ほぼ同じ結晶成長速度である小型炉と大型炉の、融液表面、固液界面、結晶底面における結晶

成長方向の熱流束の値を示した図である。図より、小型炉の方が、各面における熱流束が常に大きいことがわかる。

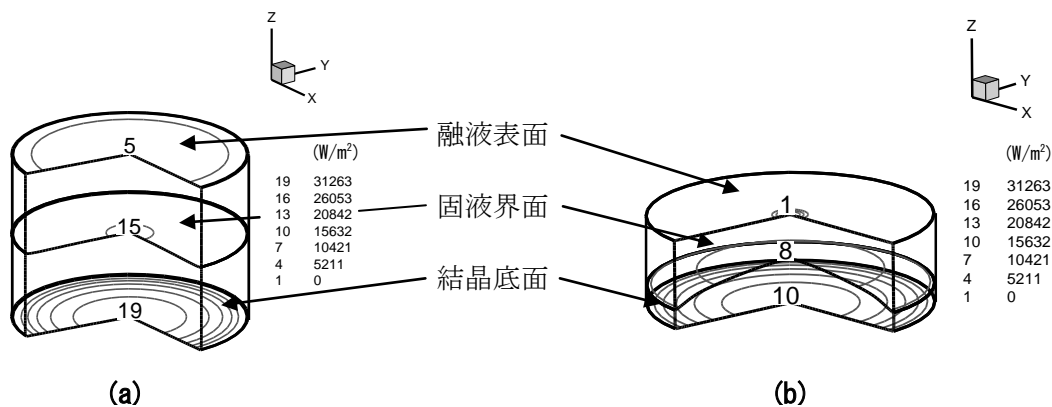


Fig. 6 (a)小型炉、(b)大型炉の融液表面、固液界面、結晶底面における結晶成長方向の熱流束の大きさ

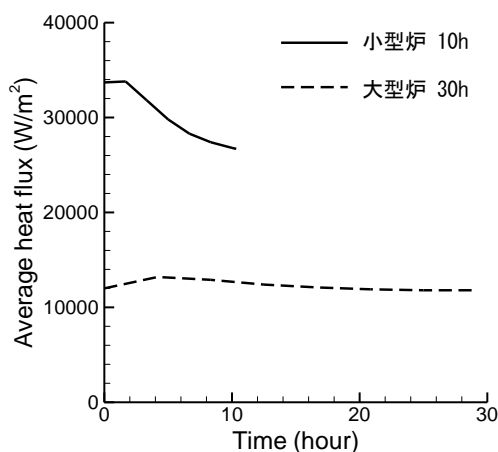


Fig. 7 結晶底面における平均熱流束の時間依存性

Fig. 7 は、小型炉と大型炉、それぞれの結晶底面における平均熱流束の時間依存性を示した図である。こちらも同様に、小型炉の方が熱流束の値が常に大きいことがわかる。この傾向は融液表面、固液界面、結晶側面など他の面でも同様であった。すなわち、小型炉の方が周囲からの輻射伝熱による熱の出入りが大きいことがわかる。このために、小型炉の方が凝固時間によって成長速度が大きく変化し、固液界面形状も同様に大きく変化すると考えられる。

5. 結論

坩堝半径と凝固時間を変化させることで、固液界面形状がどのように変化するかについて数値計算を用いて検討を行った。その結果、小型炉では成長速度が固液界面形状の決定要因であることがわかった。これに対して大型炉の場合、凝固時間によって成長速度がほとんど変化しないために、固液界面形状はほぼ同じ形状となることがわかった。これは輻

射伝熱による熱の出入りの大きさが、小型炉と大型炉で異なることが原因だということがわかった。このため、大型炉で固液界面形状を制御するためには、成長速度ではなく、熱流束の制御、すなわち炉内構造の最適化が重要だということがわかった。

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、陳 雪江氏、高 冰氏、西安交通大学の劉 立軍教授に、この場をお借りして厚く御礼申し上げます。

参考文献

- [1] A. Müller et al., MATERIALS SCIENCE AND ENGINEERING B-SOLID STATE MATERIALS FOR ADVANCED TECHNOLOGY 134 (2006) 257-262.
- [2] K. Arafune et al., Physica B 134 (2006) 236.
- [3] T. Inoue et al., J. J. A. Crystal Growth (Bulk Growth (II)), Vol.18, No.4, (1991) 494-501.
- [4] J. C. Lambropoulos et al., J. Crystal Growth 92 (1988) 390-396.
- [5] K. Kakimoto, L. Liu and S. Nakano, Mater. Sci. Eng., B 134 (2006) 269.
- [6] F. Dupret, P. Nicodème, Y. Ryckmans, P. Wouters and M. J. Crochet Int. J. Heat mass Transfer, Vol.33, No.9, (1990) 1849-1871.
- [7] T. F. Ciszek, Crystal-Growth, Properties and Applications, Vol.5, ed. E. J. Grabmaier, (Springer-Verlag, 1981) p.110.