

マルチヒーターを使用した一方向性凝固法によるシリコン多結晶育成時の熱流動解析

中野, 智
九州大学応用力学研究所

劉, 立軍
九州大学応用力学研究所

柿本, 浩一
九州大学応用力学研究所

<https://doi.org/10.15017/26826>

出版情報 : 九州大学応用力学研究所所報. 132, pp.27-36, 2007-03. Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University

バージョン :

権利関係 :

マルチヒーターを使用した一方向性凝固法による シリコン多結晶育成時の熱流動解析

中野 智*¹ 劉 立軍*¹ 柿本 浩一*¹
(2007年1月31日受理)

Analysis of temperature distribution while growing multi-crystalline silicon in a casting method with multi heater system

Satoshi NAKANO, Lijun LIU and Koichi KAKIMOTO

E-mail of corresponding author: *snaka@riam.kyushu-u.ac.jp*

Abstract

Ingot-casting method is an important method for producing high efficient solar cells with using multi-crystalline silicon. High efficient solar cells depend on the quality of the multi-crystalline silicon. However, generation of dislocation in solid is serious problem in ingot-casting method. The melt-crystal interface shape and axial temperature gradients in solid are closely connected with generation of dislocation in solid. Therefore, it is important to analyze thermal field, convection of melt and melt-crystal interface shape in the crucible to optimize ingot-casting method. 2D axisymmetric global simulation was carried out to clarify silicon crystal growth. The global model of heat transfer in the furnace includes the convective heat transfer of melt, the conductive heat transfer in all components, and the radiative heat transfer among all components in the furnace. We used three types of heat system by using two of three heaters. Distribution of power in the heaters was modified to study how such distribution modifies the temperature distribution. We changed position of heater1 and length of heater2 to study the effect of distance between position of three heaters and the melt-crystal interface. We studied the effect of which heaters we used, input heater power distribution and difference of position in three heaters on the melt-crystal interface shape, the thermal field and convection of melt in the crucible.

Key words : *global model, computer simulation, ingot-casting method, silicon*

1. 緒言

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、その対策方法として二酸化炭素の排出量削減が挙げられる。この二酸化炭素排出の大きな原因となっているのは化石燃料（石油、石炭など）の燃焼であり、その削減というものが現在の重要な課題となっている。また、化石燃料には埋蔵量に限界があるという問題もある。そこで、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の利用方法について、世界各地で様々な試みが行われている。この太陽光発電は幅広い分野で活用されており、有名などころではソーラーカーや住宅用太陽光発電システムなどがある。

Table. 1 に示すように、この太陽光発電に使用される太陽電池は、使用する材料の種類によって異なっている。現在最も使用されているものは、単結晶あるいは多結晶の

シリコン基板を用いたタイプであり、他のタイプに比べて発電効率が優れているのが特徴である。この2つの材料を比較すると、発電効率は若干低いが無難なため量産が容易である多結晶シリコン太陽電池が多用されている。

シリコン系	結晶系	単結晶シリコン太陽電池
		多結晶シリコン太陽電池
	非晶質系	アモルファスシリコン太陽電池
化合物半導体系	結晶系	単結晶化合物半導体太陽電池
		多結晶化合物半導体太陽電池

Table 1 : Various materials of a solar cell.

*1 九州大学応用力学研究所

この多結晶シリコン太陽電池の製造法として、一方向性

凝固法と呼ばれる方法がある。この方法は、まず坩堝に多結晶シリコンの結晶片を配置し、坩堝を加熱して原料を融解する。その後、この融液を冷却及び凝固させて製造する方法である。しかし、この一方向性凝固法を使用するに際して、デバイス特性を劣化させる転位の発生が大きな問題となっている。この転位などの結晶欠陥の分布と、結晶中の応力、結晶中温度勾配、固液界面形状は、密接に関係している。Fig. 1 は、結晶中の応力の値が大きい領域で、多くの転位が発生していることを示す図である。つまり、結晶中の応力と転位の発生には関係があることを示している。1) 次に Fig. 2 は、固液界面形状の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、この応力が転位を誘起するというを示した図である。2, 3, 4) さらに、転位は結晶に対して固液界面に垂直な方向に生じるという特徴がある。このため、固液界面形状の凸の度合いが大きい場合、転位が中心部分に集積することにより、結晶の品質を低下させる原因にもなっている。また、結晶中温度勾配が結晶欠陥の発生に多大な影響を及ぼすこともすでに報告されている。5, 6)

このように、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成するために大変重要である。そこで本研究では、融液・結晶の温度分布と固液界面形状の2つに着目した。一方向性凝固法において、使用するヒーターの組み合わせ、ヒーターの位置や長さ、ヒーターに加える電力の割合を変化させた。そしてそれぞれの場合において、融液・結晶の温度分布と固液界面形状がどのように変化するかを数値計算により解析、考察することを本研究の目的としている。

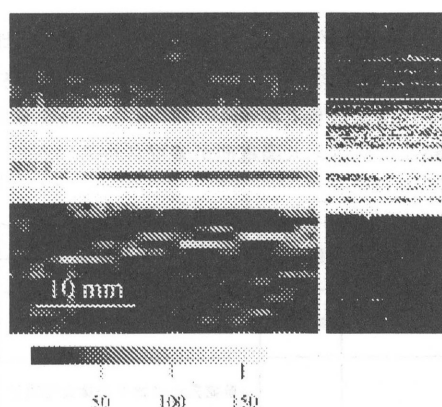


Fig. 1 : Topogram of the internal stresses (left) and the corresponding optical image of the etched surface of the same area (right) showing dislocation etch pits and twin lamellas for a EFG wafer (stress scale in 0.1 MPa units).¹⁾

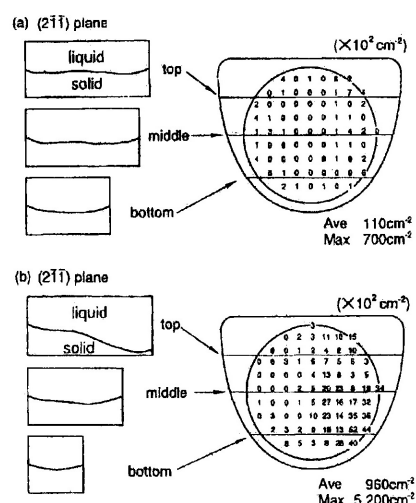


Fig. 2 : Correlation between the distribution of dislocation density and the shape of solid-liquid (S/L) interface.²⁾

- (a) The near-flat S/L interface on $(2\bar{1}\bar{1})$ plane.
 (b) The concave shape of S/L interface.

2. 計算モデル

2.1 一方向性凝固法の2次元モデル

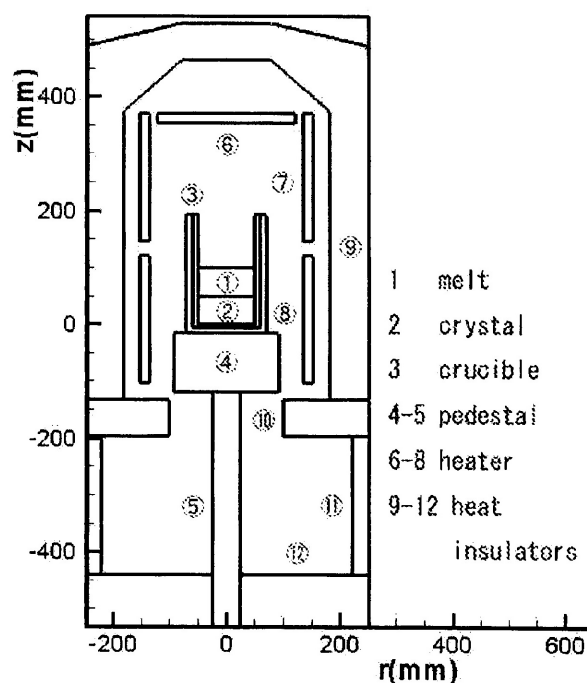


Fig. 3 : Configuration and domain partition of a casting method furnace.

一方向性凝固法に使用する小型の炉の構成図を Fig. 3 に示す。炉の形状は軸対称を仮定している。炉の構成は Fig.

3 に示すように 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。グリッドを切った坩堝内図を Fig. 4 に示す。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。今回使用するヒーターは⑥、⑦、⑧の 3 箇所のヒーターで、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。そして、固液界面位置は融液の z 軸鉛直方向 50mm の高さに設定する。

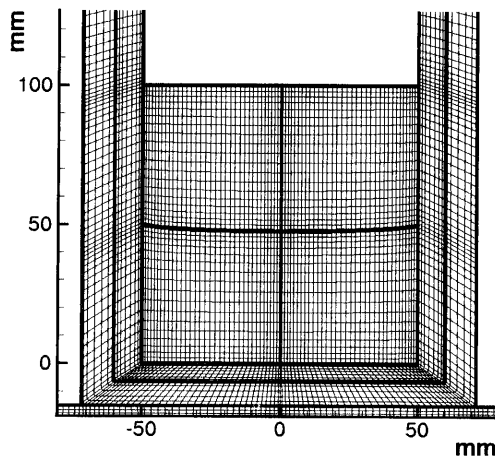


Fig. 4 : Computation grid system in the crucible.

坩堝内融液を加熱するために使用するヒーターは、
Case1: 天井部ヒーターと上部ヒーターを使用した場合
Case2: 天井部ヒーターと下部ヒーターを使用した場合
Case3: 上部ヒーターと下部ヒーターを使用した場合
という 3 つの場合で行う。また、下部ヒーターの中心位置と固液界面の中心位置までの距離を 1 とおくと、上部ヒーターからの距離は約 1.76 倍、天井部ヒーターからの距離は約 2.5 倍である。そこで、天井部ヒーターと坩堝間の距離を短縮させ、上部ヒーターの長さを天井部ヒーターの高さに一致させて短縮させるマルチヒーターを用いた。これを用いて、ヒーターと固液界面の中心位置までの距離の違いが、融液・結晶の温度分布と固液界面形状にどのような影響を及ぼすかを数値計算によって解析した。今回は天井部ヒーターと坩堝間の距離を

- ・ 本来の長さの場合 (Fig. 5 左図)
- ・ 天井部ヒーターを鉛直下方に 15mm 短縮させた場合 (Fig. 5 右図)

の 2 つの場合でヒーター位置を固定した。そして、使用するヒーターの組み合わせやヒーターに加える電力の割合を変化させた場合の融液・結晶の温度分布と対流、固液界面形状を解析・考察した。

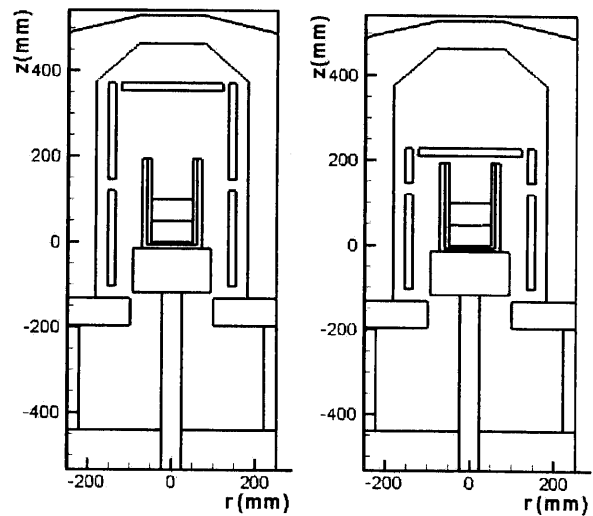


Fig. 5 : Configuration of a casting method furnaces.

2.2 支配方程式

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。

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

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

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

\vec{V} : 速度 (m/s)

ρ : 密度 (kg/m^3)

μ : 粘性係数 ($kg/m \cdot s$)

\vec{g} : 重力加速度 (m/s^2)

β : 膨張係数 ($1/K$)

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 ($W/m \cdot K$)

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。

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

$q(\vec{x})$: 熱流束 (W/m^2)

$\epsilon(\vec{x})$: 放射率

$K(\vec{x}, \vec{x}')$: 形態係数

σ : ボルツマン定数 ($W/m^2 \cdot K^4$)

$T(\vec{x})$: 表面温度 (K)

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。

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

2.3 計算の実行手順

グローバルモデルは Fig. 3 のように 12 のブロックで構成されているが、それぞれのブロックでの温度場の反復計算と、それらを結合した全体での温度場の反復計算とから成り立っている。このグローバルシミュレーターを用いて計算を行う場合、いくつかのパラメータが必要である。炉の形状、炉内構成体それぞれの物性値、結晶の融点の温度である。ヒーターの電力、固液界面形状は決まっておらず、グローバル計算の反復の結果で決まっていく。グローバル計算の反復の主な過程を以下に示す。そして Flow chart を Fig. 6 に、グローバル計算を行った結果の炉全体の温度分布図を Fig. 7 に示す。

1. 格子を生成。
2. 各種パラメータ、格子、炉の形状を読みこむ。
3. 形態係数を計算する。
4. 初期値として融液と結晶の固液界面の位置、融液と結晶内それぞれの速度、圧力、温度を読み込む。
5. 融液内の流れ、温度場、圧力を計算する。

6. 結晶の温度場を計算する。
7. 5.、6. の計算が収束しているかチェックする。もし収束していなかったら 5. に戻って再び反復計算を行う。収束していたら 8. へ。
8. ヒーターや断熱材など炉内の他のすべての構成体の温度場を計算する。
9. 隣接する炉内構成体ブロックの各境界面での輻射熱、伝熱を計算する。
10. グローバル計算が収束しているかチェックする。もし収束していなかったら格子を再生成し、ヒーターパワーを調整して 5. に戻って再び反復計算を行う。収束していたら 11. へ。
11. データを出力。

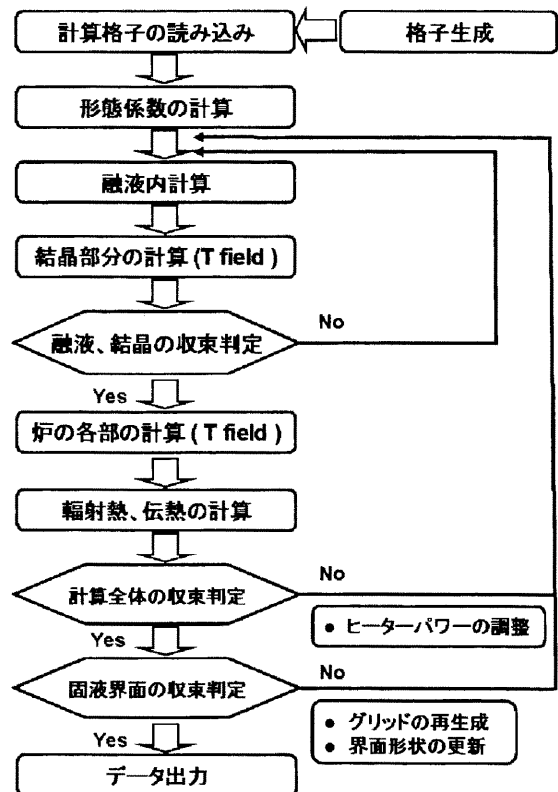


Fig. 6 : Flow chart

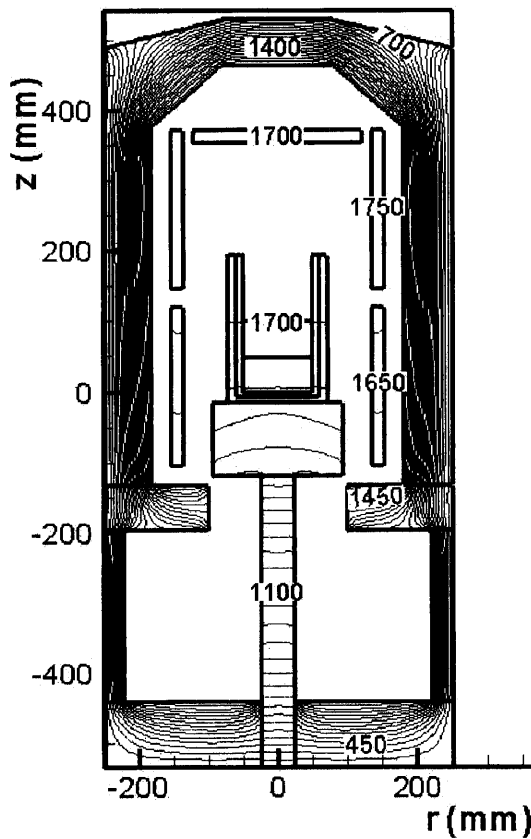


Fig. 7 : Global temperature distribution in the furnace. Isotherms are plotted every 50K.

3. 結果と考察

3.1 結晶中温度勾配とヒーター電力

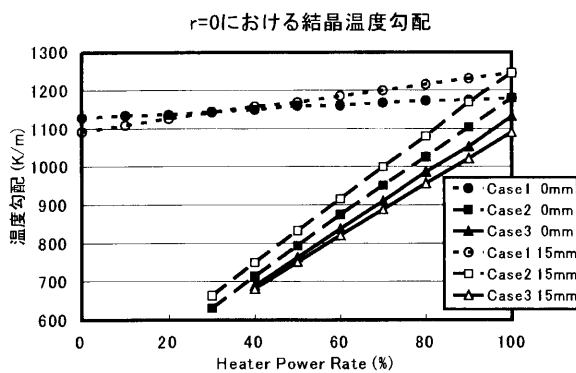


Fig. 8 : Temperature gradient of the crystal increasing the rate of power in the heater.

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と、ヒーターに加える電力の割合を示した図を Fig. 8 に示す。天井部ヒーターと坩堝との距離を短縮させていない場合を 0mm、天井部ヒーターを鉛直下方に 15mm 短縮させた場合を 15mm と Fig. 8 中の凡例に示し

ている。以後の図にても同様に示す。横軸のヒーターに加える電力の割合は Case1、Case2 の場合は天井部ヒーターに加える電力の割合を、Case3 の場合は上部ヒーターに加える電力の割合を示している。Case1 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あまり変化が見られない。これに対して Case2 の場合は天井部ヒーターに加える電力の割合を、Case3 の場合は上部ヒーターに加える電力の割合をそれぞれ増加させるにつれて、結晶の温度勾配も増大している。傾向として Case1 と Case2、Case3 で大きく分かれており、この傾向は天井部ヒーターと坩堝との距離を 15mm 短縮させた場合においてもほとんど変化がなかった。

3.2 固液界面形状の変化とヒーター電力

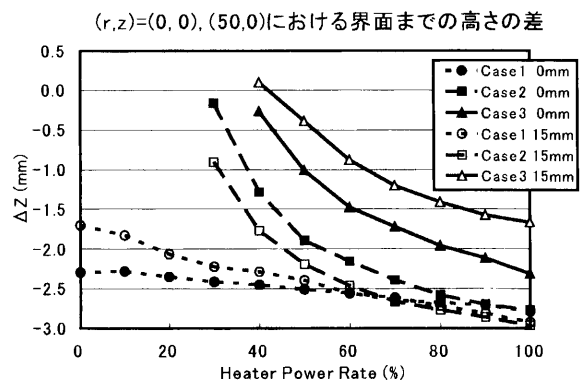
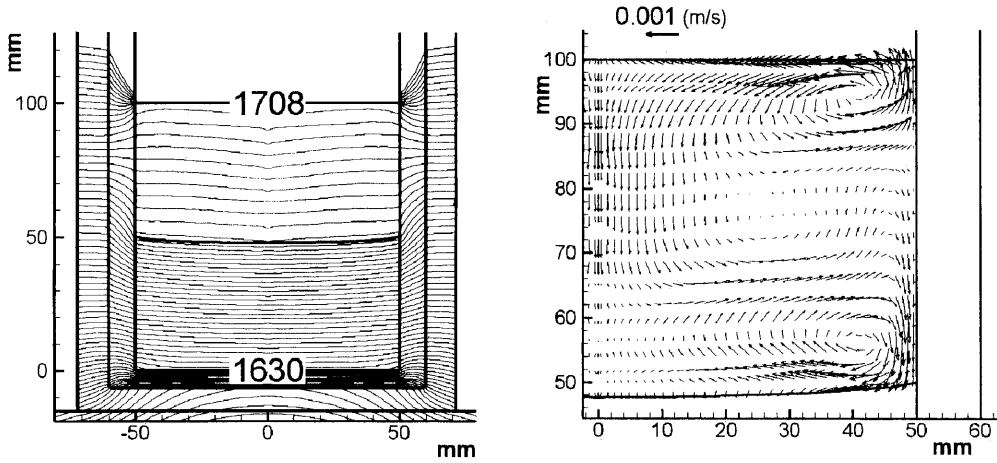
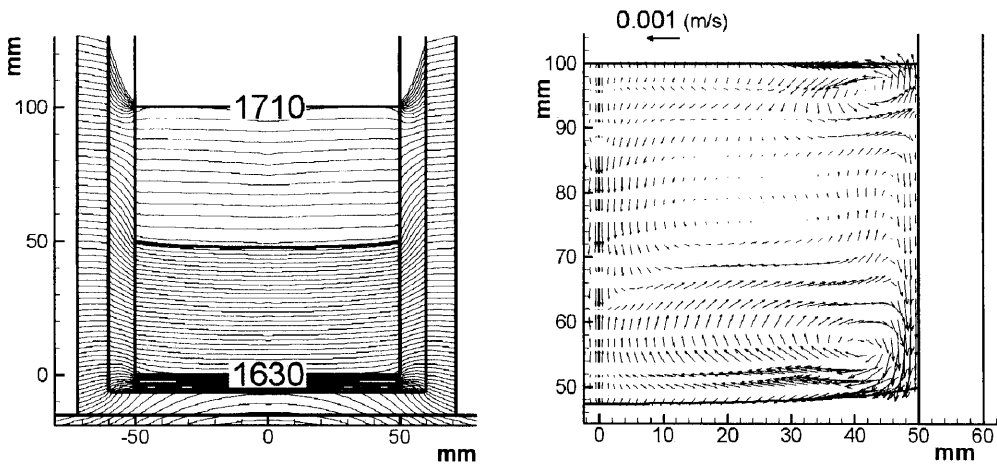


Fig. 9 : The difference of the interface height between $r=0$ and $r=50$ increasing the rate of power in the heater.

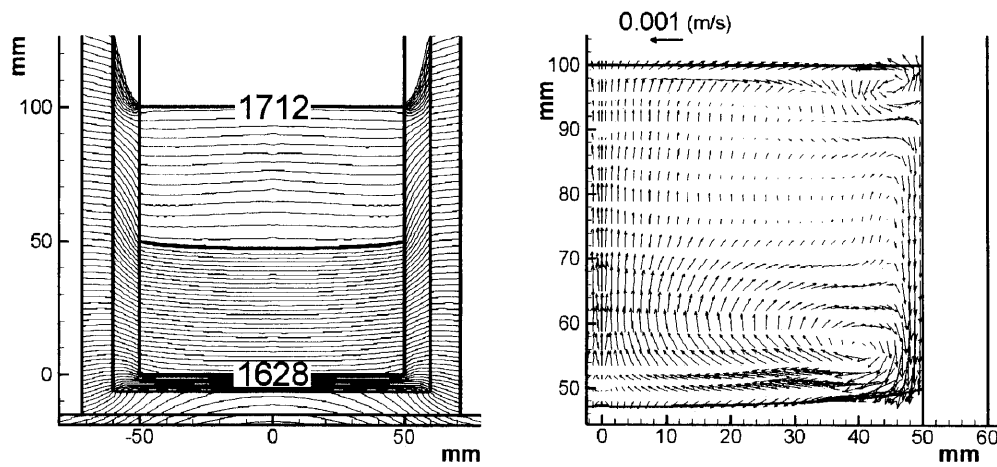
坩堝の中心位置 $r=0$ から z 軸垂直方向の固液界面までの高さ、坩堝の側面位置 $r=50$ から z 軸垂直方向の固液界面までの高さの差をとり、固液界面形状の変化を示した図を Fig. 9 に示す。横軸のヒーターに加える電力の割合は Fig. 8 と同様である。 z 軸の正方向を固液界面までの高さの差の正方向とする。つまり、固液界面までの高さの差が正の場合は固液界面形状が上に凸、負の場合は下に凸の形状のときである。Case1 の場合、天井部ヒーターに加える電力の割合を増加させても、固液界面形状は下に凸の形状でほとんど変化が見られない。これに対して Case2 の場合は天井部ヒーターに加える電力の割合を、Case3 の場合は上部ヒーターに加える電力の割合を、それぞれ増加させるにつれて固液界面形状がほぼ平坦な形状から下に凸の形状へと変化していくのがわかる。こちらも傾向として Case1 と Case2、Case3 で大きく分かれている。天井部ヒーターと坩堝との距離を 15mm 短縮させた場合、固液界面形状の凸の度合いは変化するが、傾向としては同様の傾向を示した。



(a) 天井部ヒーター : 上部ヒーター = 0(%):100(%) (0(kW):13(kW))

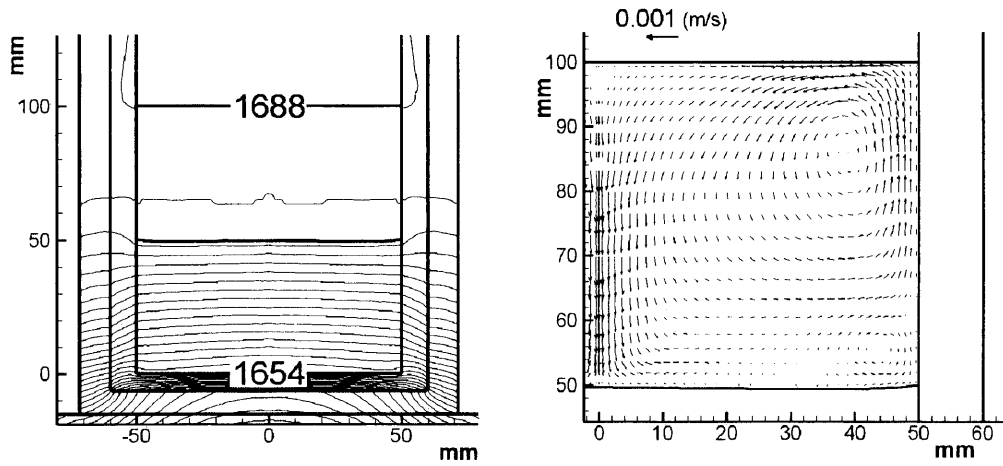


(b) 天井部ヒーター : 上部ヒーター = 50(%):50(%) (6.5(kW):6.5(kW))

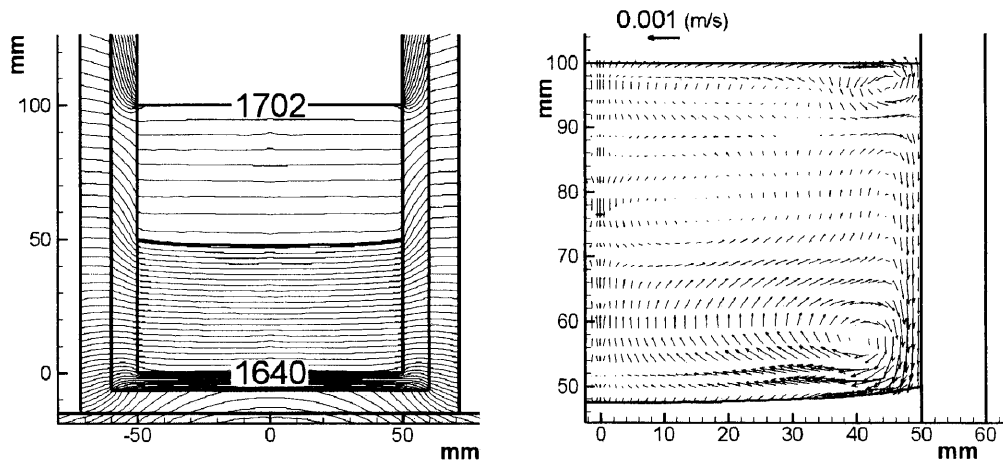


(c) 天井部ヒーター : 上部ヒーター = 100(%):0(%) (13(kW):0(kW))

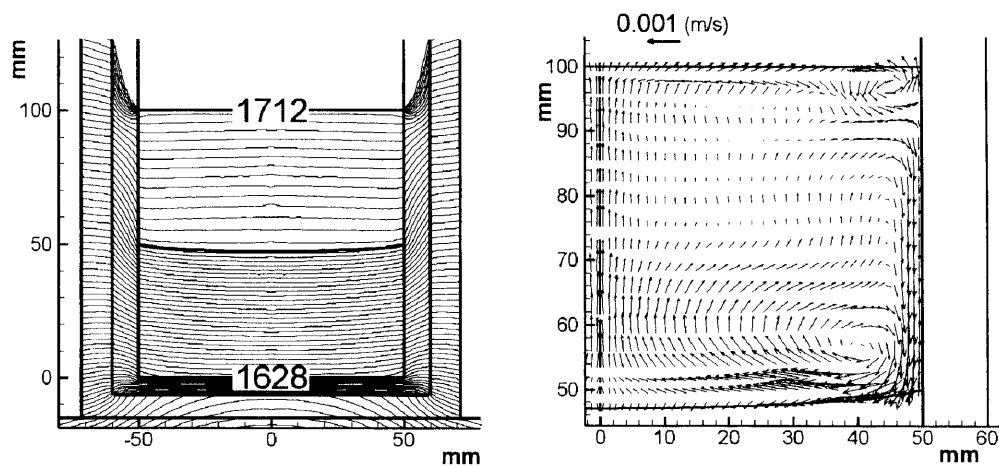
Fig. 10 : Comparison of temperature distributions and convective flow patterns of the melt in the crucible distributing the rate of power in the heater1 and heater2 (Case1).



(a) 天井部ヒーター：下部ヒーター＝30(%)：70(%) (3.9(kW)：9.2(kW))

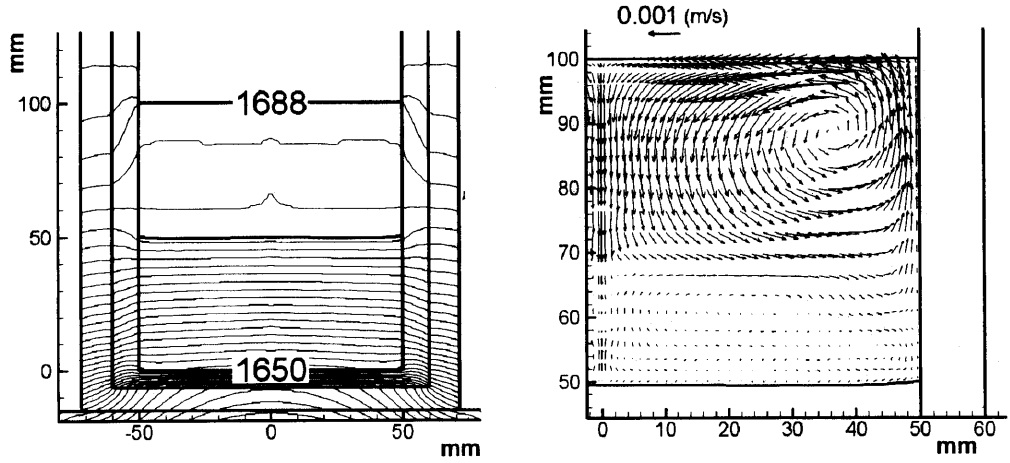


(b) 天井部ヒーター：下部ヒーター＝70(%)：30(%) (9.2(kW)：3.9(kW))

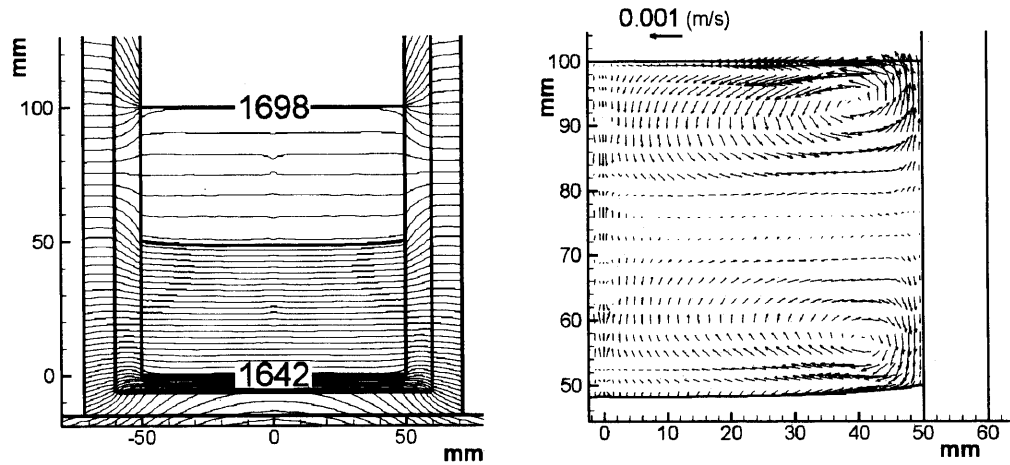


(c) 天井部ヒーター：下部ヒーター＝100(%)：0(%) (13.1(kW)：0(kW))

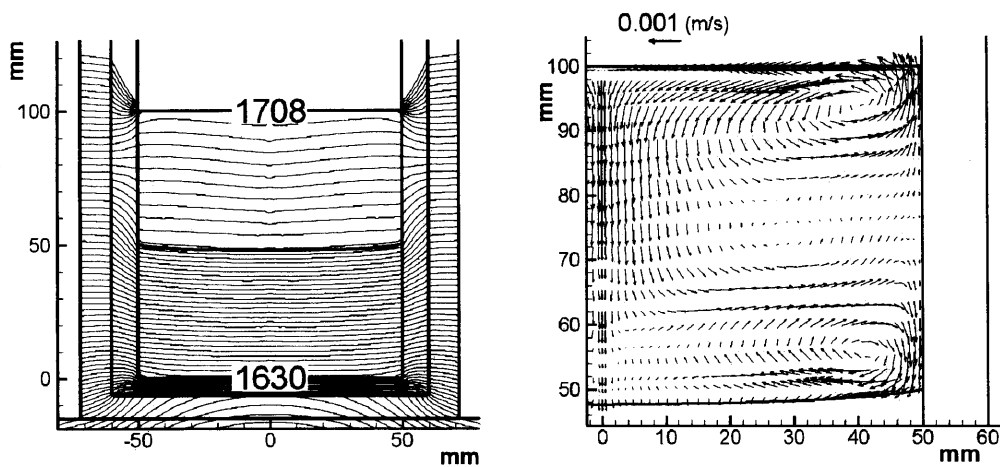
Fig. 11 : Comparison of temperature distributions and convective flow patterns of the melt in the crucible distributing the rate of power in the heater1 and heater3 (Case2).



(a) 上部ヒーター：下部ヒーター= 40(%) : 60(%) (5.2(kW) : 7.9(kW))



(b) 上部ヒーター：下部ヒーター= 70(%) : 30(%) (9.2(kW) : 3.9(kW))



(c) 上部ヒーター：下部ヒーター= 100(%) : 0(%) (13.1(kW) : 0(kW))

Fig. 12 : Comparison of temperature distributions and convective flow patterns of the melt in the crucible distributing the rate of power in the heater2 and heater3 (Case3).

3.3 融液の温度分布, 対流の変化とヒーター電力

Fig. 10, Fig. 11, Fig. 12 は、それぞれ坩堝内融液を加熱するために使用するヒーターを Case1, Case2, Case3 という 3 つの場合で行ったときの融液の温度分布図と流速分布図である。Case1, Case2 の場合は天井部ヒーターに加える電力の割合が増加するほど、Case3 の場合は上部ヒーターに加える電力の割合が増加するほど融液表面の温度が高くなるのがわかる。さらに、融液の温度分布を表している等温線が融液表面の面に対して平坦な形状になり、温度勾配も大きくなっていることがわかる。また、Case2, Case3 の場合は下部ヒーターに加える電力の割合が増加するほど、坩堝の中心位置 $r=0$ における z 軸鉛直下方向への自然対流が増大していることがわかる。ただし、下部ヒーターに加える電力の割合が Case2 の場合 70 % 付近 ($9.2kW$)、Case3 の場合 60 % 付近 ($7.9kW$) になると自然対流の強さが増し、融液の温度がシリコン融点である 1685 K に近づくので、融液表面から凝固していく可能性がある。よってここで計算を終了させている。この傾向は天井部ヒーターと坩堝との距離を 15mm 短縮させた場合においても同様の傾向を示した。

3.4 固液界面形状, 結晶中温度勾配と熱流束の関係

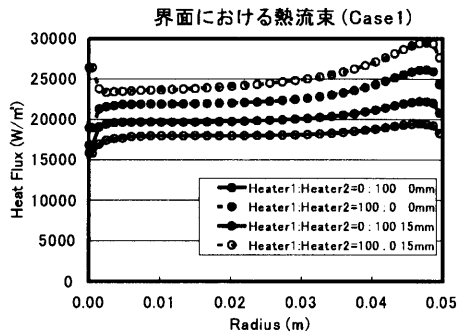


Fig. 13 : Heat flux of axial direction to melt-crystal interface(Case1).

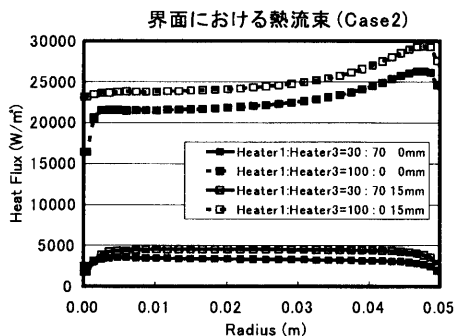


Fig. 14 : Heat flux of axial direction to melt-crystal interface(Case2).

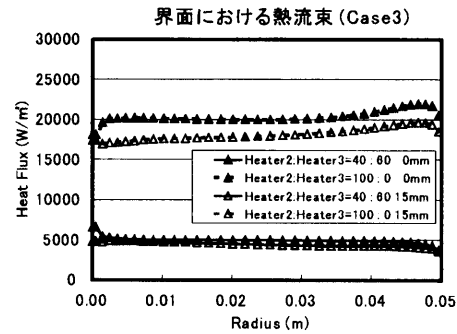


Fig. 15 : Heat flux of axial direction to melt-crystal interface(Case3).

Fig. 13, Fig. 14, Fig. 15 は、それぞれ Case1, Case2, Case3 の場合における、固液界面に対して垂直方向の熱流束の大きさを示した図である。この 3 つの図より、使用する 2 つのヒーターのうち上部にあるヒーターに加える電力の割合を増加させるにつれて、熱流束の値も増加するということがわかった。3.1, 3.2, 3.3, 3.4 の結果より、固液界面に対して垂直方向の熱流束が、固液界面形状、結晶中温度勾配の大きさに影響を及ぼしていると考えられる。つまり、鉛直上方向からの熱流束が大きい場合、固液界面に対して垂直方向の熱流束が増大する。すると固液界面形状は下に凸の度合いが増大し、結晶中温度勾配も増大する。これに対して水平方向からの熱流束が大きい場合、固液界面に対して垂直方向の熱流束が減少する。すると固液界面形状は水平に近づき、結晶中温度勾配は減少すると考えられる。

4. 結言

2 次元軸対称のグローバル計算を行い、坩堝内融液を加熱するために使用するヒーターを Case1, Case2, Case3 という 3 つの場合で行った。そしてそれぞれの場合において天井部ヒーターと坩堝との距離を

- ・ 本来の長さの場合
- ・ 天井部ヒーターを鉛直下方に 15mm 短縮させた場合の 2 つの場合でヒーター位置を固定した。そして、ヒーターに加える電力の割合を変化させた場合の坩堝内結晶及び融液の温度分布、対流、固液界面形状を解析・考察した。その結果、天井部ヒーターを鉛直下方に 15mm 短縮させた場合、固液界面形状の凸の度合い、結晶中温度勾配共に変化が見られるが、傾向として Case1 と Case2, Case3 で大きく分かれることがわかった。Case1 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いくと、温度勾配も固液界面の下に凸の形状も若干増大するが、ほとんど変化が見られなかった。よって結晶の育成においては天井部ヒーターは使用せず、上部ヒーターのみを使用する方が良いということがわかった。これに対して Case2, Case3 の

場合、固液界面までの高さの差のグラフ、結晶中温度勾配のグラフとも同じような形状になっており、両方とも下部ヒーターに加える電力の割合の変化が固液界面形状や結晶中温度勾配に大きく影響していることがわかった。次に下部ヒーターに加える電力の割合が、Case2 の場合 70 % 付近 (9.2kW) で、Case3 の場合 60 % 付近 (7.9kW) で固液界面までの高さの差がほぼ 0、つまり平坦な形状に近づくことがわかった。また、固液界面に対して垂直方向の熱流束が、固液界面形状、結晶中温度勾配の大きさに影響を及ぼしているということがわかった。固液界面に対して垂直方向の熱流束が大きい場合、固液界面形状は下に凸の度合い、結晶中温度勾配共に増大する。これに対して、固液界面に対して垂直方向の熱流束が小さい場合、固液界面形状は水平に近づき、結晶中温度勾配は減少するということがわかった。

参考文献

- 1) H. J. Moller, C. Funke, A. Lawerenz, S. Riedel, M. Werner, *Solar Energy Materials & Solar Cells* 72 (2002) 403-416.
- 2) T. Inoue, T. Matsutomo, M. Yokogawa, K. Fujita, *J. J. A. Crystal Growth (Bulk Growth (II))*, Vol.18, No. 4, (1991) 494-501.
- 3) J. C. Lambropoulos, C. N. Delametter, *J. Crystal Growth* 92 (1988) 390-396.
- 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.