

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ СОПРЯЖЕННОГО ТЕПЛООБМЕНА ПРИ ПОЛУЧЕНИИ СЛИТКОВ КРЕМНИЯ МЕТОДОМ БРИДЖМЕНА

П.В. Антонов, В.С. Бердников

Институт теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН, Новосибирск

NUMERICAL MODELING OF CONJUGATE HEAT TRANSFER AT SILICON INGOT PRODUCTION BY THE METHOD OF BRIDGMAN

P.V. Antonov, V.S. Berdnikov

Kutateladze Institute of Thermophysics SB RAS, Novosibirsk

The conjugate heat transfer was studied numerically at multisilicon ingot production by various versions of the Bridgman-Stockbarger method. The non-stationary equations of convective heat transfer in area occupied by silicon melt and heat-conductivity equation for the solid silicon body and walls of the graphite crucible of regular cylindrical shape with flat or conical bottom were solved, considering the heat of phase transition. Processes of crystallization in modes of non-stationary heat conductivity and thermal gravitational convection were compared.

Введение

Солнечная энергетика – одно из активно развиваемых направлений альтернативной энергетики и имеет перспективы стать основой крупномасштабной электроэнергетики будущего [1]. Главные ограничения на пути развития солнечной энергетики в настоящее время - это дефицит кремния на мировом рынке и высокая цена моно- и мультикремния, который является основным материалом для изготовления фотоэлектрических преобразователей [1]. Поэтому организация массового производства и использования солнечных энергосистем связана с созданием оптимальных технологий получения кремния солнечного качества, обеспечивающих радикальное снижение его стоимости и позволяющих существенно снизить стоимость фотоэлектрических модулей. Один из возможных вариантов новой технологии основан на глубокой очистке (рафинировании) металлургического кремния и получении из него достаточно качественных слитков мультикремния методом Бриджмена-Стокбаргера [2].

Метод Бриджмена разрабатывался технологами исходя из предположения, что, охлаждая контейнер с расплавом со дна, можно подавить свободную конвекцию и обеспечить условия роста слитка в диффузионном режиме с плоским фронтом кристаллизации, что, возможно, обеспечивает более однородное распределение электрофизических свойств в плоскости нормальной к направлению роста [3]. Однако, как показано в [2], из-за различия коэффициентов теплопроводности расплава кремния и материала тигля, в системе с донным охлаждением неизбежно возникают радиальные градиенты температуры, вызывающие конвективные течения в расплаве. По мере развития технологии стало ясно, что конвекция помимо ответственности за радиально-азимутальную неоднородность электрофизических свойств в кристаллах, может играть и положительную роль в процессах уноса отторгаемых от фронта кристаллизации примесей, что способствует дополнительной очистке исходного материала. Поэтому задача фундаментальных исследований – изучить основные свойства конвективного течения в условиях сопряженного теплообмена; оценить роль гидродинамики расплава в формировании формы фронта на разных стадиях роста кристалла и в процессах массообмена у фронта кристаллизации, а также найти технологически приемлемые способы управления гидродинамикой и конвективным тепло- и массообменом на разных стадиях процесса получения слитка.

Постановка задачи

При выращивании кристаллов мультикремния методом Бриджмена в технологических условиях тигель с расплавом кремния вначале выдерживается в верхней части печи (стадия плавления шихты и гомогенизации расплава), имеющей цилиндрическую форму, а затем медленно опускается из зоны с постоянной температурой стенок печи в зону со

снижающейся по линейному закону температурой стенок. При этом начинается выхолаживание дна тигля, и при достижении уровня температуры на дне тигля чуть ниже температуры кристаллизации кремния начинается зарождение кристалла. Тигель – цилиндрический контейнер из графита марки МПГ-6-1 с одинаковой толщиной стенок и дна. Расплав кремния заполняет тигель до заданного уровня H . Свободное пространство в тигле – между крышкой и свободной поверхностью расплава кремния – заполнено газом аргоном.

Задача рассматривается в осесимметричной постановке в приближении Буссинеска. Будем пренебрегать изменением плотности кремния при переходе из одного агрегатного состояния в другое и полагать, что совокупный объем закристаллизовавшегося кремния и расплава постоянен, а область, занятая кремнием, не меняет своей геометрии. Также будем полагать, что теплообмен в газовой прослойке между свободной поверхностью расплава и крышкой тигля происходит только за счет теплопроводности. Задача решается в системе координат, связанной с тиглем. В этом случае процесс опускания тигля заменяется равноценным процессом выхолаживания дна при продвижении с постоянной скоростью вдоль внешней поверхности стенки тигля точки излома профиля температуры, т.е. точки перехода от участка с линейным распределением температуры (в придонной области) к участку с постоянным значением температуры на верхней части стенки тигля.

Перенос тепла в стенках тигля, в кристалле и в газовой прослойке осуществляется за счет теплопроводности. Конвективный теплообмен в расплаве описывается системой уравнений Навье-Стокса, энергии и неразрывности, которые в переменных температура - T , функция тока - ψ , вихрь - ω сводятся к системе:

$$\begin{cases} \rho c_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \vec{V} \nabla T \right) = \lambda \Delta T; \\ \frac{\partial \omega}{\partial t} + \vec{V} \nabla \omega + \frac{\partial \psi}{\partial z} \frac{\omega}{r} = -\beta g \frac{\partial T}{\partial r} + \nu \left(\Delta \omega - \frac{\omega}{r^2} \right); \\ \Delta \psi - \frac{\psi}{r^2} + \omega = 0; \end{cases}$$

где ρ - плотность, c_p - теплоемкость, $\vec{V} = \left(-\frac{\partial \psi}{\partial z}, \frac{1}{r} \frac{\partial(\psi r)}{\partial r} \right)$ - скорость конвективного течения, λ - теплопроводность, β - коэффициент объемного расширения, g - ускорение свободного падения, ν - кинематическая вязкость.

На внутренних стенках тигля для расплава задаются условия непротекания и прилипания, т.е. равенство нулю всех компонент скорости, откуда следует:

$$\psi|_{\Gamma} = 0; \quad \frac{\partial \psi}{\partial n}|_{\Gamma} = 0.$$

Будем считать, что на границе раздела расплав-газ трение отсутствует, а сама граница является плоской и недеформируемой, откуда следует:

$$\psi|_{\Gamma} = 0; \quad \omega|_{\Gamma} = 0.$$

На границе раздела кристалл-расплав задаются условия Стефана, т.е. неразрывность температуры и тепловых потоков с учетом выделения тепла фазового перехода на фронте:

$$T|_{\Gamma_{LS}} = T|_{\Gamma_{SL}}; \quad \lambda_S \frac{\partial T}{\partial n}|_{\Gamma_{LS}} = \lambda_L \frac{\partial T}{\partial n}|_{\Gamma_{SL}} + \rho L V_S;$$

где L - теплота фазового перехода, V_S - скорость продвижения фронта кристаллизации.

На внешней стороне дна тигля температура линейно падает со временем:

$$T|_{\Gamma} = T_{MAX} - V_C \nabla T_F t$$

где T_{MAX} - температура в горячей зоне печи, ∇T_F - градиент температуры в печи, V_C - скорость опускания тигля.

На внешней части боковой стенки тигля температура определяется следующим образом:

$$T|_{\Gamma} = \nabla T_F z + T_{MAX} - V_C \nabla T_F t, \quad 0 \leq z \leq V_C t; \quad T|_{\Gamma} = T_{MAX}, \quad V_C t \leq z \leq H.$$

Для численного моделирования использовался метод конечных элементов. Базисные функции – линейные. Конечные элементы – треугольники. Приблизительное число элементов адаптивной сетки – 20200, приблизительное число узлов – 10500.

Результаты исследований

Численно проведено моделирование роста слитка кремния в тиглях близких по геометрии к тиглям, используемым в ИГХ СО РАН для технологических экспериментов, а именно: цилиндрический тигель с плоским дном и цилиндрический тигель с коническим дном. Исследовались два режима теплообмена: режим нестационарной теплопроводности и термогравитационной конвекции, при скорости опускания тигля – 1.4см/ч и начальном перегреве расплава относительно температуры кристаллизации – 40К.

В тигле с плоским дном, практически сразу после старта процесса начинается эффективное выхолаживание расплава через дно тигля. Однако, из-за различия коэффициентов теплопроводности расплава кремния и материала тигля, одновременно с отводом тепла из расплава через охлаждаемое дно тигля, наиболее интенсивным в приосевой области, происходит эффективный подвод тепла от перегретой изотермической верхней части боковой стенки по стенкам тигля к периферии дна тигля в осевом направлении. Возникающие в системе радиальные градиенты температуры неизбежно порождают конвективное течение в расплаве. Это течение имеет торообразную структуру с восходящим потоком у стенок тигля и опускным потоком в центре. С момента возникновения течение захватывает весь объем расплава. Тигель с коническим дном, в отличие от тигля с плоским дном, на протяжении достаточно длительного времени после старта процесса (20-25 минут) остается практически изотермическим. Причина этого в значительно меньшей площади поверхности, через которую отводится тепло из расплава. Конвективное течение расплава имеет ползущий характер. Однако по мере увеличения площади охлаждаемой поверхности в расплаве точно так же возникают радиальные градиенты температуры, генерирующие торообразное конвективное течение, захватывающее вначале не всю область тигля (рис. 1, 2).

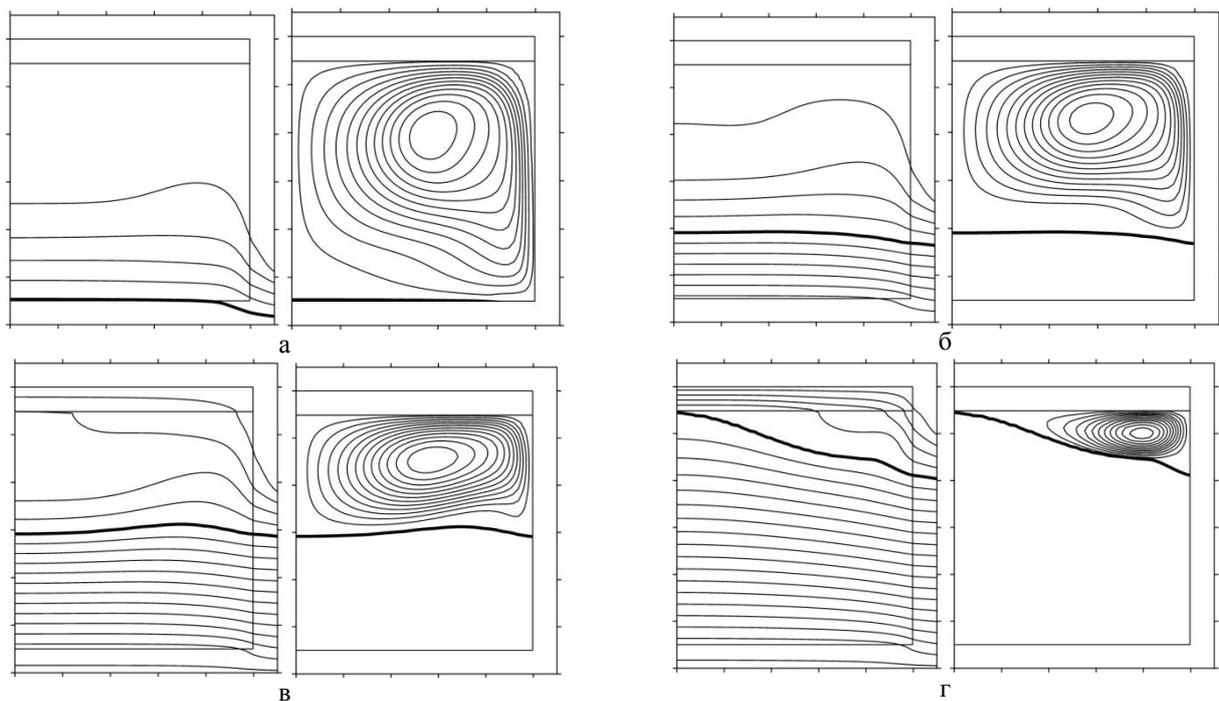


Рис. 1. Поля температуры и изолинии функции тока в режиме термогравитационной конвекции через 55.25 мин (а), 117.5 мин (б), 170 мин (в) и 220 мин (г) после начала опускания тигля.

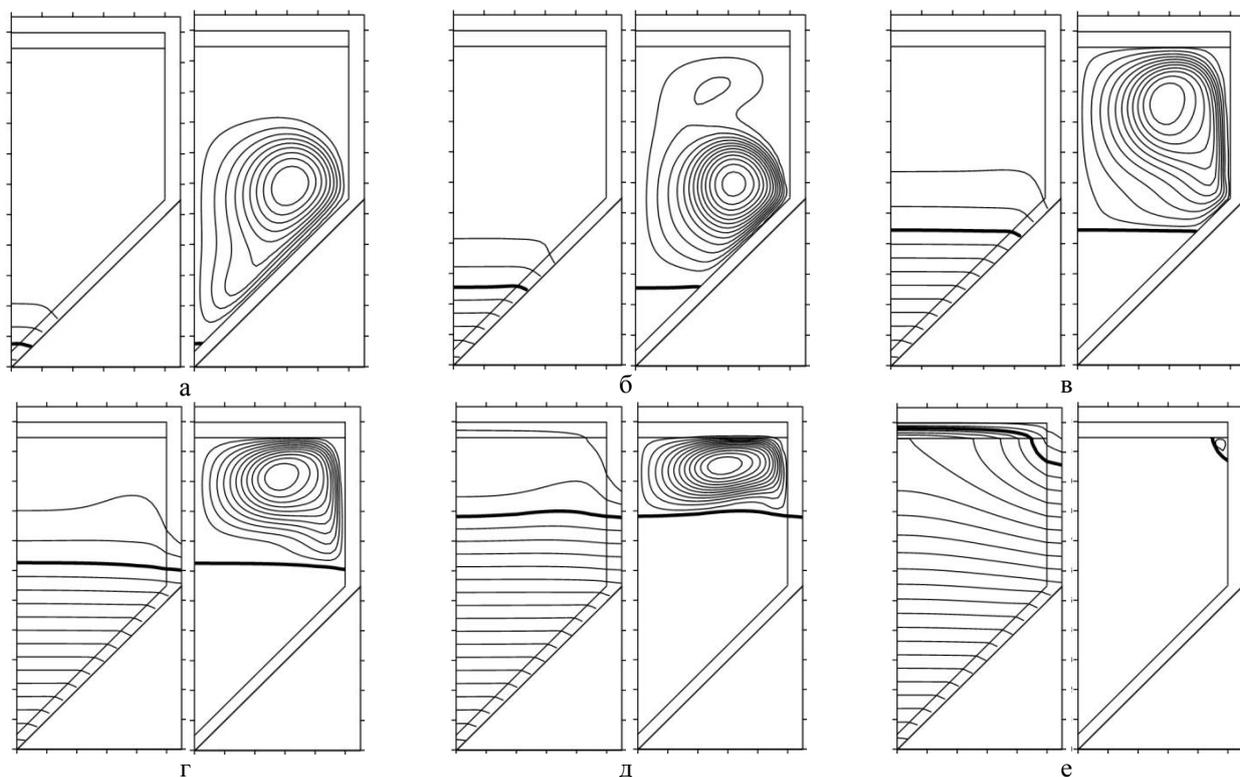


Рис. 2. Поля температуры и изолиний функции тока в режиме термогравитационной конвекции через 76 мин (а), 152 мин (б), 228 мин (в), 304 мин (г), 380 мин (д), 456 мин (е) после начала опускания тигля.

Восходящий поток, формирующийся у наклонной стенки тигля, утыкается в перегретый слой расплава, расположенный в верхней части тигля. На начальной стадии формируется конвективная ячейка, верхняя граница которой расположена примерно на половине высоты цилиндрической части тигля. По мере продвижения фронта, при достижении 1/3 высоты конической части, конвективная ячейка имеет двухвихревую структуру (рис. 2б). Впоследствии, одновихревая конвекция, как и в случае тигля с плоским дном, начинает охватывать всю область расплава. Таким образом, становится понятно, что режим теплопроводности на практике нереализуем. Однако его изучение позволяет оценить влияние конвекции на поле температуры, форму фронта кристаллизации и темп роста кристалла.

Сравнение полей температуры и тепловых потоков в режиме теплопроводности и в режиме термогравитационной конвекции показывает, что потоки тепла по стенкам графитового тигля к периферии дна и в радиальном направлении к слоям расплава, прилегающим к боковым стенкам существенны в обоих анализируемых режимах. Но при возникновении конвекции формирование восходящего потока расплава у боковых стенок приводит к подтягиванию относительно перегретого расплава сверху к дну в центре области. Относительно слабого конвективного течения расплава кремния, обладающего свойствами высокотеплопроводного расплавленного металла, с амплитудой около 3-4 мм/сек достаточно, чтобы в центральной части придонной области радиальное распределение теплового потока стало практически однородным. Это является следствием основной особенности конвективного течения в анализируемой системе: у стенок тигля формируется компактный восходящий поток кольцевой формы, а в центральной части равномерно рассредоточенный по радиусу нисходящий поток нагретого расплава, натекающий на холодное дно. Изменение температурного поля внутри расплава приводит к тому, что на протяжении большей части процесса фронт имеет достаточно плоскую форму, на начальных стадиях даже параллельную дну тигля, за исключением небольшого участка вблизи боковой стенки тигля. В заключительной стадии процесса фронт в конвективном режиме вначале становится даже вогнутым в расплав, а затем, при достижении критического значения толщины слоя расплава и ослабления конвективного течения снижается относительная роль

конвективного теплообмена, резко меняется форма фронта. Фронт становится выпуклым. В режиме теплопроводности фронт кристаллизации от зарождения до конца процесса имеет ярко выраженную выпуклую в расплав форму (рис. 3).

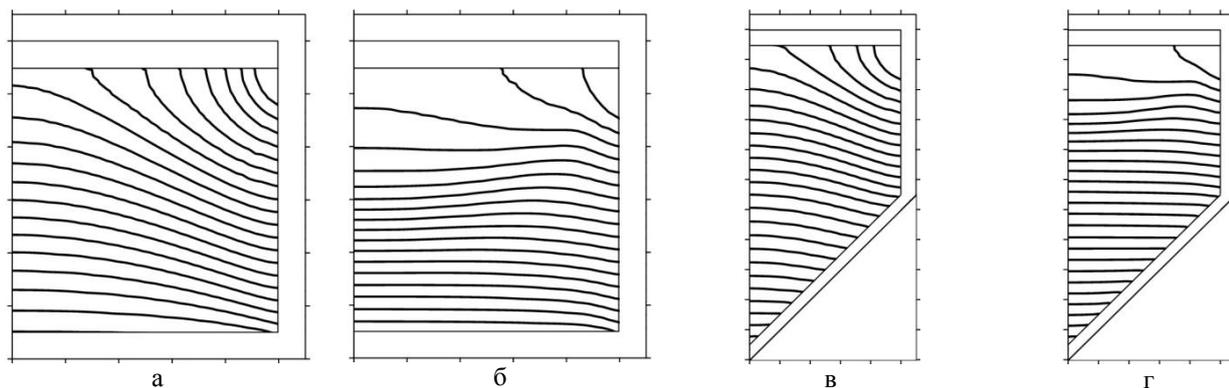


Рис. 3. Эволюция фронта кристаллизации в режимах нестационарной теплопроводности (а, в) и термогравитационной конвекции (б, г). Двум соседним положениям фронта соответствует промежуток времени $\Delta t=10$ мин. (а, б), $\Delta t=15$ мин. (в, г).

В методах направленной кристаллизации важной является начальная стадия процесса – формирование затравочного кристалла. При выращивании слитков мультикремния проблема формирования затравочного монокристалла не стоит так остро, как в случаях получения монокристаллов электронного качества, но для получения наиболее однородных слитков желательно организовать рост из одного зародыша. В тигле с коническим дном, благодаря геометрии тигля зарождение кристалла гарантированно происходит на дне тигля на оси симметрии (в вершине конуса). При выращивании кристаллов в тигле с плоским дном необходимо принимать дополнительные меры для обеспечения появления зародыша кристалла в приосевой области. При сравнении формы фронта кристаллизации видно, что в режиме теплопроводности кристаллизация начинается на дне тигля в приосевой области с существенно меньшими радиальными размерами, чем в конвективном режиме. В конвективном режиме зарождающийся фронт кристаллизации может иметь кольцевую форму, при которой однородность слитка заведомо будет низкой. Поэтому на начальном этапе, при зарождении кристалла, режим теплопроводности был бы предпочтительнее. Однако после формирования затравочного кристалла уже плоский или слегка выпуклый в расплав фронт кристаллизации является предпочтительным с технологической точки зрения. Поэтому на начальной стадии процесса необходим поиск методов управления интенсивностью конвекции вплоть до ее полного подавления (например, с помощью равномерного вращения тигля или наложения однородного магнитного поля).

На протяжении большей части процесса кристаллизации в режиме термогравитационной конвекции рост кристалла несколько замедляется по сравнению с режимом нестационарной теплопроводности. Причина этого в более эффективном подводе тепла конвективными течениями за счет переноса (подтягивания) перегретого расплава из верхней области тигля к фронту. В заключительной стадии процесса темп кристаллизации в конвективном режиме заметно возрастает из-за изменения скорости конвективного течения и снижения относительной роли конвективного теплообмена. Перераспределение тепла за счет конвективного теплообмена приводит также к тому, что в режиме термогравитационной конвекции кристаллизация начинается позднее по сравнению с режимом нестационарной теплопроводности. Однако эта разница достаточно мала (2-5 минут) и в масштабах времени всего процесса незначительна. Из-за менее интенсивного отвода из тепла для тигля с коническим дном кристаллизация начинается существенно позже, чем для тигля с плоским дном.

Независимо от режима теплообмена полная кристаллизация расплава происходит за одинаковый промежуток времени. Причина этого в смене механизмов, оказывающих

основное влияние на процесс фазового перехода, на разных стадиях технологического процесса. На начальной стадии, основными факторами определяющими скорость продвижения фронта являются донное выхолаживание расплава и конвективные подвод тепла к фронту. В финальной стадии, когда расплав кремния занимает лишь небольшую пристеночную область, основным фактором, лимитирующим продвижение фронта, становится боковой подогрев расплава. И как бы быстро не закристаллизовалась основная часть расплава, полностью весь расплав закристаллизуется только тогда, когда тигель полностью опустится в нижнюю зону печи и его стенки достаточно охладятся (рис. 4).

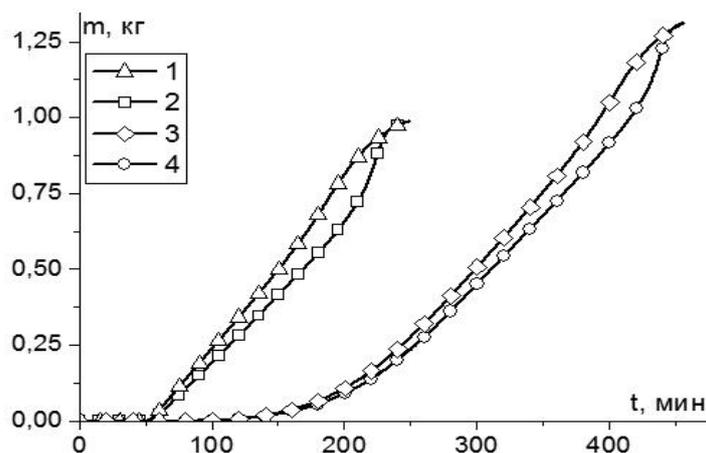


Рис. 4. Динамика роста массы кристалла; тигель с плоским дном: 1 – режим теплопроводности, 2 – режим ТГК; тигель с коническим дном: 3 – режим теплопроводности, 4 – Режим ТГК;

Заключение

Показано, что форма фронта существенно зависит от режима теплообмена. В режиме нестационарной теплопроводности фронт имеет сильновыпуклую форму на протяжении всего процесса кристаллизации. В режиме термогравитационной конвекции фронт на начальных этапах процесса практически плоский. На завершающей стадии процесса фронт вначале приобретает сначала вогнуто-выпуклую форму, а затем становится выпуклым.

Зарождение кристалла в режиме термогравитационной конвекции происходит позже, и темп кристаллизации на протяжении большей части процесса в данном режиме ниже, чем в режиме нестационарной теплопроводности. Однако из-за технологических особенностей метода полная кристаллизация расплава достигается в обоих режимах одновременно. Время зарождение кристалла в тигле с коническим дном значительно запаздывает относительно времени зарождения кристалла в тигле с плоским дном (рис. 4).

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант 09-08-01245а) и интеграционным проектом СО РАН № 34-2009.

Список литературы

1. Алфёров Ж.И., Андреев В.М., Румянцев В.Д. Тенденции и перспективы развития солнечной фотоэнергетики // Физика и техника полупроводников. 2004. Т. 38, вып. 8. С. 937-948.
2. Бердников В.С., Филиппова М.В., Красин Б.А., Непомнящих А.И. Численное моделирование теплофизических процессов при выращивании кристаллов мультикремния методом Бриджмена-Стокбаргера // Теплофизика и Аэромеханика. 2006. Т. 13, №2. С. 275-293.
3. Анфимов И.М., Бердников В.С, Выговская Е.А., Кобелева С.П., Смирнов А.А., Осипов Ю.В., Торопова О.В., Мурашев В.Н. Однородность распределения удельного электросопротивления в монокристаллическом кремнии, выращенном методом Чохральского // Изв. ВУЗов, Материалы электронной техники. 2007. № 4. С. 40-44.