

表面张力温度系数对硅单晶生长的影响 *

李友荣¹ 邓努波^{1,2} 吴双应¹ 彭岚¹ 李明伟¹

(1. 重庆大学 2. 重庆电力高等专科学校)

摘 要 利用有限元方法对硅单晶 Czochralski(Cz) 法生长炉内的流动和传输过程进行了全局数值模拟,研究了表面张力温度系数对硅单晶生长过程的影响,模拟的表面张力温度系数范围是 $(0\sim 0.35) \times 10^{-3} \text{N/m}\cdot\text{K}$ 。结果表明:随着表面张力温度系数的增加,由 Marangoni 效应驱动的熔体表面流动能强化熔体的自然对流,从而减小了通过熔体自由界面的温差,降低了加热器的功率。但是,结晶界面更凸向熔体,在结晶界面处晶体内的轴向温度梯度减小;对常规 Cz 炉,结晶界面处的平均氧浓度先减小然后增大,而对于具有气体导板的 Cz 炉,Marangoni 效应总是使结晶界面处的平均氧浓度减小。

关键词 材料科学基础学科,全局分析,有限元方法,硅 Cz 炉,表面张力温度系数

分类号 O782

文章编号 1005-3093(2005)04-0395-06

Effects of temperature coefficient of surface tension on the silicon crystal Czochralski growth

LI Yourong^{1**} DENG Nubo^{1,2} WU Shuangying¹ PENG Lan¹ LI Mingwei¹

(1. College of Power Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044

2. Department of Power Engineering, Chongqing Electric Power College, Chongqing 400053)

* Supported by National Natural Science Foundation of China No.50376078 and No.50476042. Manuscript received August 23, 2004; in revised form February 4, 2005.

** To whom correspondence should be addressed, Tel:(023)65112284,

E-mail:liyurong@yahoo.com

ABSTRACT A set of global numerical simulations was conducted using the finite-element method for surface tension temperature coefficient from 0 to $0.35 \times 10^{-3} \text{N/m}\cdot\text{K}$, and the effects of the temperature coefficient of surface tension on the silicon crystal Czochralski growth were investigated. The results show that radial surface flow of the melt driven by the Marangoni effect enhances a large toroidal roll cell driven by buoyancy, therefore heat transfer ability is increased, both the temperature difference between crucible wall and crystal across the melt/gas interface and the heater power decrease when the surface tension temperature coefficient increases. Furthermore, the melt/crystal interface becomes more convex toward the melt, and the axial temperature gradient in the crystal decreases with increasing of surface tension temperature coefficient. The average oxygen concentration along the crystal/melt interface has a minimum value for the conventional Cz furnace and decreases with the gas guide for the Cz furnace.

KEY WORDS foundational discipline in materials, global analysis, finite-element method, silicon Cz furnace, surface tension temperature coefficient

* 国家自然科学基金 50376078, 50476042 资助项目。2004 年 8 月 23 日收到初稿; 2005 年 2 月 4 日收到修改稿。
本文联系人: 李友荣, 教授, 重庆市 400044, 重庆大学动力工程学院

在硅单晶 Czochralski(Cz) 法生长过程中, 熔体流动的驱动力很多, 例如温差引起的浮力, 晶体和/或坩埚旋转产生的离心力和 Coriolis 力, 气体在自由界面引起的切应力以及表面张力随温度变化引起的热毛细力等. 许多学者进行了大量的数值模拟^[1~3], 使得对熔体内的流动和氧的传输过程有了一个基本的了解. 但是, 在这些数值模拟中没有考虑自由表面上热毛细力的作用. Kawanishi 等^[4]、Kanda 等^[5] 和 Nakanishi 等^[6] 的研究结果表明, 由 Marangoni 效应驱动的自由表面流动在决定晶体内的氧浓度和均匀性方面起着重要的作用; Sabhapathy 等^[7] 和 Chung 等^[8] 在数值模拟中考虑到了 Marangoni 效应对熔体流动的影响, 其表面张力温度系数的取值为 $0.28 \times 10^{-3} \text{N/m}\cdot\text{K}$. 但是, 在他们的数值模拟中只考虑了熔体内的流动过程, 没有考虑气相与熔体间的相互作用, 更没有研究 Marangoni 效应对结晶界面形状的影响. Kakimoto^[9] 进行了横向非均匀磁场作用下硅熔体内氧浓度分布的数值模拟, 其表面张力温度系数取为 $0.1 \times 10^{-3} \text{N/m}\cdot\text{K}$; 在本文作者的一系列全局数值模拟中^[10~12], 为了简化起见, 总是将其表面张力温度系数固定在 $0.07 \times 10^{-3} \text{N/m}\cdot\text{K}$. 事实上, 表面张力温度系数随熔体内的氧浓度和自由界面上 SiO 的蒸发速率在一个较大的范围内变化^[13,14]. 因此, 本文主要采用有限元方法研究表面张力温度系数对硅单晶 Czochralski(Cz) 法生长过程中熔体内的流动、结晶界面形状和晶体内氧浓度的影响.

1 计算方法

单晶硅 Cz 炉的总体结构与以前采用的结构^[10~12] 完全相同, 炉子直径 360 mm, 总高 817 mm, 坩埚内直径 72 mm, 晶体直径 35 mm, Cz 炉外壁维持恒定温度 $T_0 (=350 \text{K})$, 气体导板的内径为 51.5 mm、厚度为 2.0 mm 的同心圆筒, 其最低点位于自由界面上 11.4 mm 处. 为简化起见, 分析中假定: (1) 气相和熔体流动均为轴对称稳态层流, 熔体为不可压缩流体, 除表面张力外, 满足 Boussinesq 近似; (2) 氩气为理想气体; (3) 在结晶界面上没有过冷发生, 因此, 界面温度即为熔点温度 T_m ; (4) 熔体 - 气体界面形状满足 Yang-Laplace 方程; (5) 表面张力温度系数变化范围为 $(0 \sim 0.35) \times 10^{-3} \text{N/m}\cdot\text{K}$, 气体流量 $Q=0.5 \text{L/min}$ 、压力 $P=1333 \text{Pa}$. 基本控制方程、边界条件、物性参数和数值方法与文献^[10, 11] 相同.

为了便于对计算结果进行分析比较, 在计算过程中通过调整加热器功率使晶体的提拉速度维持在 1.1 mm/min 左右, 提拉速度误差控制在 0.08 mm/min 以内. 在轴对称稳态流动条件下, 速度场可用流函数 Ψ 来表示, 其定义为: $u = (1/r)\partial\Psi/\partial z$, $v = -(1/r)\partial\Psi/\partial r$.

2 结果与讨论

2.1 常规 Cz 炉内热区

图 1 给出了常规单晶硅 Cz 炉内两种情况下热区的等温线分布 (左侧)、熔体内等流函数线分布和熔体 - 气体界面上部的流动矢量场 (右侧). 在图 1a 中, 表面张力温度系数为零, 熔体的流动仅由浮力驱动, 而在图 1b 中, 表面张力温度系数为 $0.35 \times 10^{-3} \text{N/m}\cdot\text{K}$, 熔体的流动由浮力和热毛细力联合驱动. 在这两种情况下, 熔池内都存在一个大的逆时针方向旋转的涡胞, 而在熔体自由界面上部, 气体的流动极弱.

在自由界面上由 Marangoni 效应驱动的、从坩埚壁向着晶体的表面流动随着表面张力温度系数的增大而加强, 特别是在靠近晶体处, 其向内的表面切向速度 V_r 会迅速增大 (图 2a); 由于自由表面热毛细流动方向与浮力流动方向相同, 熔体内逆时针方向旋转的涡胞加强, 最大流函数 Ψ_{\max} 增大 (图 3a); 强化的熔体流动会带来两方面的后果, 一方面高温熔体以更高的速度流向结

晶界面,使结晶界面更凸向熔体,结晶界面处晶体内的轴向温度梯度 $(\partial T/\partial z)_c$ 会减小,如图 2b(图中 δ_z 为结晶界面中心轴向坐标与边缘轴向坐标之差)和 3b 所示;另一方面由于流动被加强,熔体内的对流换热过程得到强化,熔体内的最高温度必然降低,通过熔体自由界面的温差 δT 将减小,加热器加热功率也会下降。

表面张力温度系数的变化对晶体中平均氧浓度 $[O]_{ave}$ 的影响比较复杂。当 $\gamma_T=0$ 时,尽管自由界面上熔体氧浓度很低,这种低氧浓度的熔体也不能有效地传输至结晶界面。因此,晶体中的氧浓度较高。当考虑 Marangoni 效应时,尽管自由界面上熔体氧浓度有稍许增大,但自由界面的熔体能被有效地输送至结晶界面,使晶体中的氧浓度急剧下降。但是,当表面张力温度系数 γ_T 超过 $0.07 \times 10^{-3} \text{N/m}\cdot\text{K}$ 后, γ_T 的增加又使更多的坩锅壁面附近的高氧浓度的熔体经由自由界面传输至结晶界面,使晶体中的氧浓度增大(图 3c)。

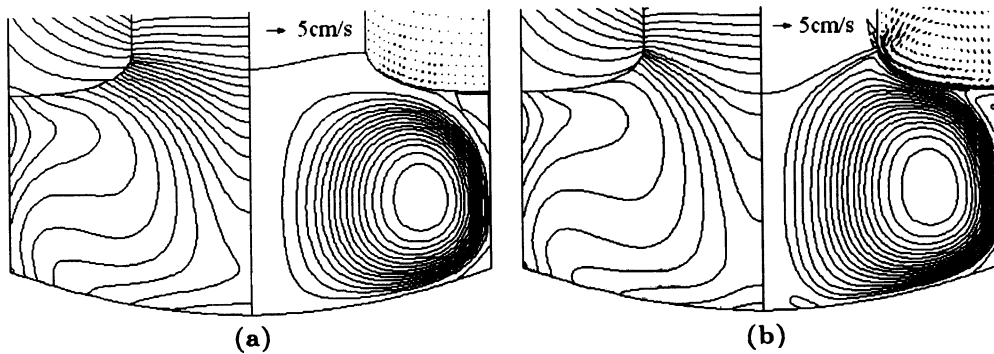


图 1 常规 Cz 炉内热区的等温线、熔体内等流函数线和熔体-气体界面上部的气体流动矢量场

Fig.1 Isotherms in hot zone, contours of stream function and the gas flow vectors above the melt/gas interface in conventional Cz furnace. $\Delta T_i = 1 \text{ K}$, $\Delta T_g = \Delta T_s = 5 \text{ K}$, $\Delta \psi = 0.15 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$. (a) $\gamma_T = 0$; (b) $\gamma_T = 0.35 \times 10^{-3} \text{ N/m}\cdot\text{K}$

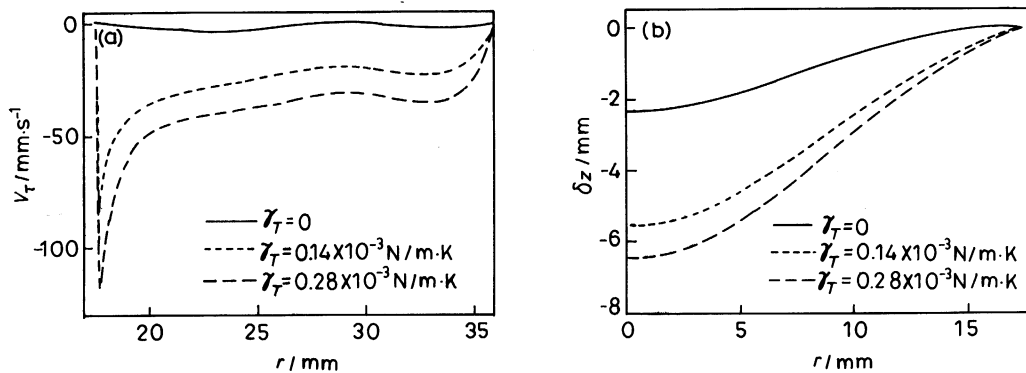


图 2 常规 Cz 炉内自由表面切向速度分布 (a) 和结晶界面形状变化 (b)

Fig.2 Tangential velocity distributions along (a) the free surface and (b) the melt/crystal interface shape in conventional Cz furnace

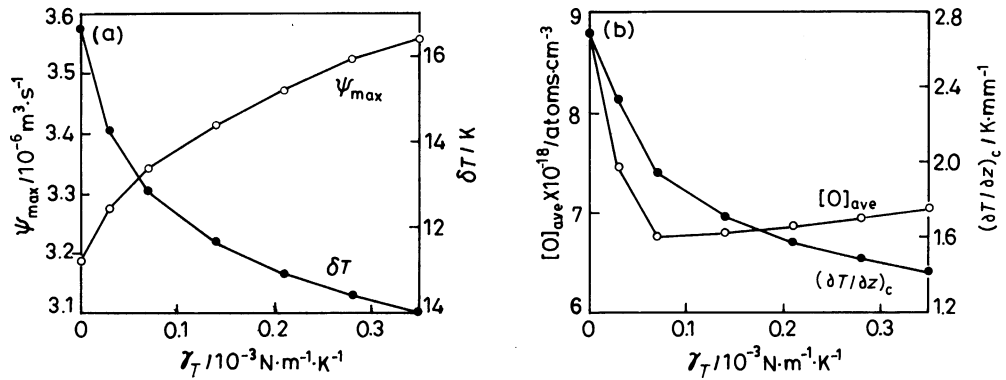


图3 常规 Cz 炉内表面张力温度系数的影响

Fig.3 Effect of the temperature coefficient of the surface tension in conventional Cz furnace

2.2 具有气体导板 Cz 炉内热区

图 4 给出了具有气体导板单晶硅 Cz 炉内热区的等温线分布 (左侧)、熔体内等流函数线和熔体 - 气体界面上部的气体流动矢量 (右侧). 在这种 Cz 炉内, 所有气体都在导板的引导下流经熔体自由表面, 在自由表面上产生一个较大的切向应力, 使得在熔体自由表面附近的流动变得比较复杂, 当 $\gamma_T=0$ 时, 气体流动驱动一个顺时针方向旋转的涡胞 (图 4a); 当考虑自由界面 Marangoni 效应时, 热毛细力与气体作用时的切应力方向相反, 使气体导板下面顺时针方向旋转的涡胞被削弱. 当 $\gamma_T=0.14 \times 10^{-3} \text{ N/m} \cdot \text{K}$ 时, 只在气体导板下很小的区域内熔体表面流动为向外流动, 在晶体和坩埚附近, 熔体流动都为热毛细力驱动的向内的径向流动 (图 5a), 当表面张力温度系数超过 $0.25 \times 10^{-3} \text{ N/m} \cdot \text{K}$ 后, 自由表面附近顺时针方向旋转的涡胞完全被抑制, 整个表面流动都为向着晶体的流动 (图 4b).

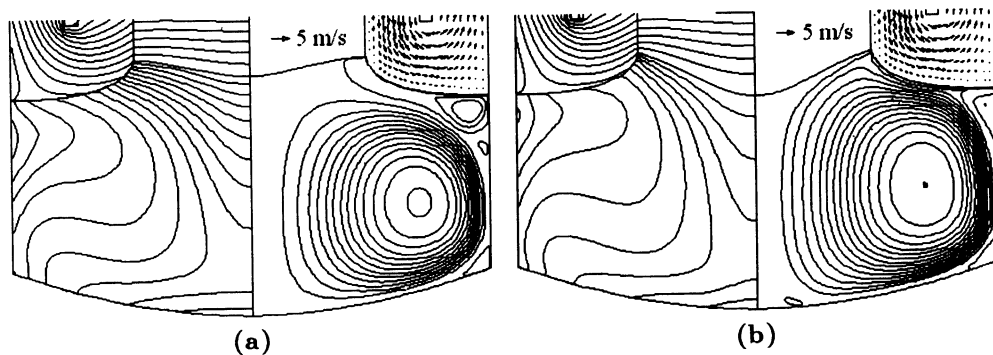


图4 具有气体导板的 Cz 炉内热区的等温线、熔体内等流函数线和熔体 - 气体界面上部的气体流动矢量场 $\Delta T_l = 1 \text{ K}$, $\Delta T_g = \Delta T_s = 5 \text{ K}$, $\Delta \psi = 0.15 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$

Fig.4 Isotherms in hot zone, contours of stream function and the gas flow vectors above the melt/gas interface in Cz furnace with gas guide. $\Delta T_l = 1 \text{ K}$, $\Delta T_g = \Delta T_s = 5 \text{ K}$, $\Delta \psi = 0.15 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$. (a) $\gamma_T = 0$; (b) $\gamma_T = 0.35 \times 10^{-3} \text{ N/m} \cdot \text{K}$

由于自由界面上由 Marangoni 效应驱动的向着晶体的表面流动会抑制气体驱动的自由表面下的顺时针方向旋转的涡胞, 浮力驱动的熔体内逆时针方向旋转的涡胞会被加强, 最大流函数 Ψ_{\max} 增大 (图 5a); 此时, 高温熔体以更高的速度流向结晶界面, 使结晶界面更凸向熔体, 结晶界面处晶体内的轴向温度梯度减小, 如图 5b 和 6b; 同时, 流动的加强使熔体内的对流换热过程强化, 熔体内的最高温度降低, 通过熔体自由界面的温差 δT 将减小, 加热器加热功率也会下降. 由于热毛细力将自由界面上的低氧浓度熔体带至结晶界面, 晶体中的氧浓度随着表面张力温度系数的增大而下降 (图 6c).

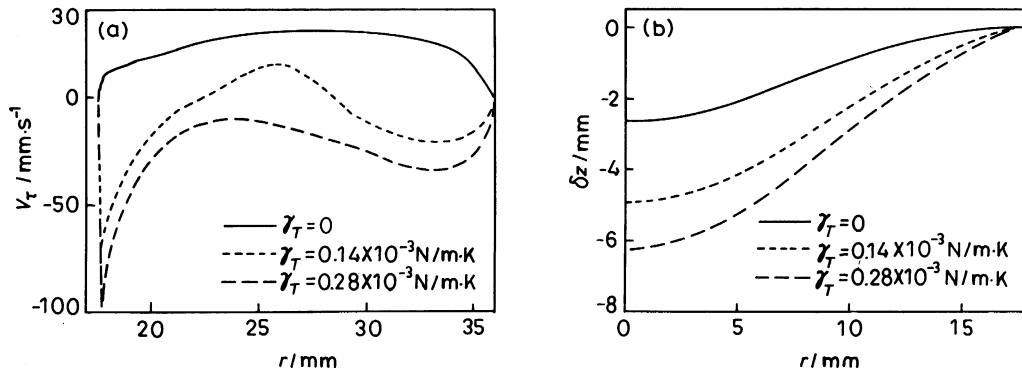


图 5 具有气体导板的 Cz 炉内自由表面切向速度分布 (a) 和结晶界面形状变化 (b)

Fig.5 Tangential velocity distributions along the free surface (a) and the melt/crystal interface shape (b) in Cz furnaces with gas guide

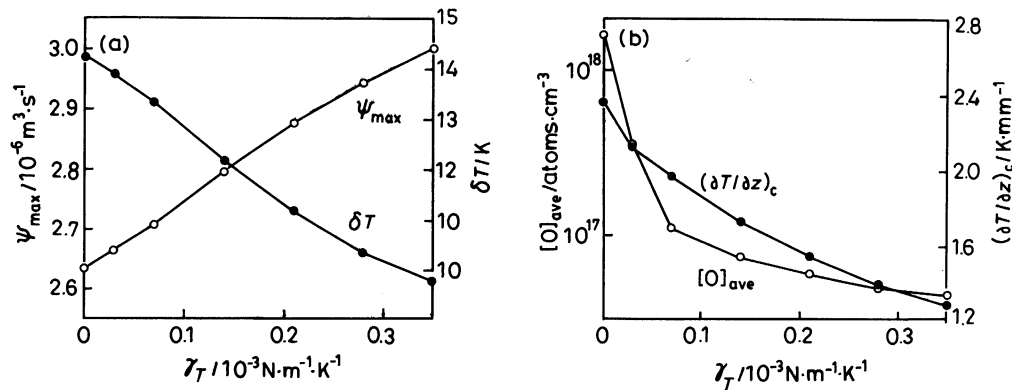


图 6 具有气体导板的 Cz 炉内表面张力温度系数的影响

Fig.6 Effect of the temperature coefficient of the surface tension in Cz furnaces with gas guide

3 结 论

对于小型硅 Cz 炉, 随着表面张力温度系数的增加, 自由表面上的 Marangoni 效应可强化熔体内的自然对流过程, 减小通过熔体自由界面的温差, 降低加热器功率, 但是结晶界面会更凸向熔体, 结晶界面处晶体内的轴向温度梯度减小; 对常规 Cz 炉, 结晶界面平均氧浓度会先减小而后

增大,对于具有气体导板的 Cz 炉, Marangoni 效应总是使结晶界面处的平均氧浓度减小.

参 考 文 献

- 1 A.Lipchin, R.A.Brown, J. Crystal Growth, **205**, 71(1999)
- 2 M.Watanabe, K.M.Yi, T.Hibiya, Kakimoto, Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials, **38**, 215(1999)
- 3 J.S.Kim, T.Y.Lee, J. Crystal Growth, **219**, 205(2000)
- 4 S.Kawanishi, S.Togawa, K.Izunome, K.Terashima, S.Kimura, Jpn. J. Appl. Phys., **34**, 5885(1995)
- 5 I.Kanda, T.Suzuki, K.Kojima, J. Crystal Growth, **166**, 669(1996)
- 6 H.Nakanishi, M.Watanabe, K.Terashima, J. Crystal Growth, **236**, 523(2002)
- 7 P.Sabhapathy, M.E.Salcudean, J. Crystal Growth, **113**, 164(1991)
- 8 H.T.Chung, S.C.Lee, J.K.Yoon, J. Crystal Growth, **163**, 249(1996)
- 9 K.Kakimoto, J. Crystal Growth, **230**, 100(2001)
- 10 LI Yourong, RUAN Dengfang, PENG Lan, WU Shuangying, Chinese Journal of Materials Research, **18**(2), 212(2004)
(李友荣, 阮登芳, 彭 岚, 吴双应, 材料研究学报, **18**(2), 212(2004))
- 11 LI Yourong, RUAN Dengfang, PENG Lan, WU Shuangying, Chinese Journal of Materials Research, **18**(2), 219(2004)
(李友荣, 阮登芳, 彭 岚, 吴双应, 材料研究学报, **18**(2), 219(2004))
- 12 LI Yourong, YU Changjun, LI Mingwei, WU Shuangying, PENG Lan, Chinese Journal of Materials Research, **19**(3), 249(2005)
(李友荣, 余长军, 李明伟, 吴双应, 彭 岚, 材料研究学报, **19**(3), 249(2005))
- 13 S.Kimura, K.Terashima, J. Crystal Growth, **180**, 323(1997)
- 14 K.Mukai, Z.Yuan, K.Nogi, T.Hibiya, ISIJ International, **40**, S148(2000)