

轴向磁场对硅单晶 Czochralski 生长 过程的影响 *

李友荣 余长军 吴双应 彭岚

(重庆大学)

摘 要 利用有限元方法对炉内的传递过程进行了全局数值模拟, 假定熔体和气相中的流动都为稳态轴对称层流, 熔体为不可压缩流体, Cz 炉外壁温度维持恒定, 模拟磁场强度范围为 (0~0.3)T, 研究了用 Czochralski(Cz) 法生长单晶硅轴向磁场对熔体流动和氧传输过程的影响. 结果表明: 轴向磁场可有效地抑制熔体内的流动, 但增大加热器功率和结晶界面处晶体内的轴向温度梯度; 对于常规 Cz 炉, 轴向磁场可增大结晶界面平均氧浓度, 而对于具有气体导板的 Cz 炉, 则会减小结晶界面平均氧浓度.

关键词 材料科学基础学科, 全局分析, 有限元方法, 硅 Cz 炉, 轴向磁场

分类号 O782

文章编号 1005-3093(2005)03-0249-06

Effects of an axial magnetic field on silicon crystal Czochralski growth

LI Yourong** YU Changjun WU Shuangying PENG Lan
(College of Power Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044)

* Supported by National Natural Science Foundation of China No50376078, No50476042.
Manuscript received August 9, 2004; in revised form February 3, 2005.

** To whom corresponding: should be addressed, Tel:(023)65112284,
E-mail:liyurong@yahoo.com

ABSTRACT In order to understand the effects of the axial magnetic field on the silicon melt flow and oxygen transport in a silicon Czochralski (Cz) furnace, a set of global numerical simulations was conducted using the finite-element method for the magnetic field strength from 0 to 0.3 T. It was assumed that the flow was axisymmetric laminar in both the melt and the gas, the melt was incompressible and a constant temperature was imposed on the outer wall of the Cz furnace. The results show that the silicon melt flow is suppressed but the heater power and the axial temperature gradient on the melt-crystal interface increase when a uniform axial magnetic field is applied. The average oxygen concentration along the melt-crystal interface increases in conventional Cz furnace but decreases with increasing of the axial magnetic field strength in Cz furnace with gas guide.

KEY WORDS foundational discipline in materials science, global analysis, finite-element method, silicon Cz furnace, axial magnetic field

* 国家自然科学基金 50376078, 50476042 资助项目.

2004 年 8 月 9 日收到初稿; 2005 年 2 月 3 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

Czochralski(Cz) 方法是从熔体中生长单晶硅的最重要的方法之一. 在这种方法中, 晶体中氧缺陷的浓度和均匀性主要取决于熔体的流动状态, 施加磁场是控制单晶硅生长时熔体对流的一种有效方法. 为此, 许多学者进行了大量的实验研究和数值模拟^[1~4]. 结果表明, 在磁场作用下, 熔体内的流动被抑制, 强的磁场可降低晶体内氧的平均浓度, 并使氧的径向分布的不均匀性减小. 但是在已有的数值模拟中, 都只考虑了熔体内的流动和传输过程, 而对熔体与周围环境间的传热传质过程进行了极大的简化, 例如假定在坩埚壁的热边界条件为恒热流或给定的温度分布, 在自由界面上氧的浓度为零或者蒸发速率为常数等等. 显然, 这些条件与实际过程是不相符的, 因此, 为了了解 Cz 炉的整体特性, 必须采用全局分析方法^[5,6], 即将 Cz 炉内的整体传热传质过程、气相与熔体的流动、以及晶体的提拉速度等作为一个整体求解. 本文采用有限元方法研究轴向磁场对硅单晶 Czochralski 生长过程的影响.

1 理论模型

常规单晶硅 Cz 炉的总体结构与文献^[5,6]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 $T_0(=350\text{ K})$. 为了研究气体流动对熔体流动与传热的影响, 在熔体自由界面上部设置了一气体导板. 为简化起见, 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 , 熔体-气体界面形状满足 Yang-Laplace 方程; (4) 氩气进口处的氧化硅浓度为零, 在熔体-气体自由界面上熔体中的氧浓度和气相中氧化硅的分压力处于化学平衡状态^[7], 且蒸发进入气相中的氧化硅不会再在任何固体表面上沉积; (5) 在熔体-坩埚界面上的氧浓度按溶解平衡式计算; (6) 感应磁场忽略不计, 熔体和晶体外表面电流为零.

在上述假定条件下, Cz 炉内各相的控制方程为:

在熔体中: $\nabla \cdot \mathbf{v}_l = 0$; $\rho_l \mathbf{v}_l \cdot \nabla \mathbf{v}_l = -\nabla p_l - \nabla \cdot \boldsymbol{\tau}_l + \rho_l g \beta (T_l - T_m) \mathbf{e}_z + \mathbf{F}_l$, 其中 $\mathbf{F}_l = \mathbf{J} \times \mathbf{B}$ 为 Lorentz 力, $\mathbf{J} = \sigma_l (\mathbf{v}_l \times \mathbf{B} - \nabla \Phi)$. $\rho_l C_{pl} \mathbf{v}_l \cdot \nabla T_l = \lambda_l \nabla \cdot \nabla T_l$, $\mathbf{v}_l \cdot \nabla x_O = D_O \nabla \cdot \nabla x_O$.

在气相中: $\nabla \cdot (\rho_g \mathbf{v}_g) = 0$; $\rho_g \mathbf{v}_g \cdot \nabla \mathbf{v}_g = -\nabla p_g - \nabla \cdot \boldsymbol{\tau}_g - \rho_g g \mathbf{e}_z$; $\rho_g C_{pg} \mathbf{v}_g \cdot \nabla T_g = \nabla \cdot (\lambda_g \nabla T_g)$; $\nabla \cdot (c_g \mathbf{v}_g y_{SiO}) = \nabla \cdot (c_g D_{SiO} \nabla y_{SiO})$.

在晶体中: $\rho_s C_{ps} V_s \mathbf{e}_z \cdot \nabla T_s = \nabla \cdot (\lambda_s \nabla T_s)$. 在加热器中: $\nabla \cdot (\lambda_h \nabla T_h) + q = 0$. 在其它固体构件中: $\nabla \cdot (\lambda_i \nabla T_i) = 0$.

在以上各式中, \mathbf{v} 为速度矢量, ρ 为密度, p 为压力, $\boldsymbol{\tau}$ 为应力张量, g 为重力加速度, β 为熔体热膨胀系数, T 为温度, \mathbf{e}_z 为垂直方向单位矢量, C_p 为定压比热, λ 为导热系数, c 为摩尔浓度, D 为质量扩散系数, x 和 y 分别为熔体内氧和气相中氧化硅的摩尔分数, V_s 为晶体提拉速度, q 为加热器发热率, σ 为电导率, Φ 为电流势, \mathbf{B} 为轴向磁场. 下标 l 表示熔体, g 表示气体, O 表示氧, SiO 表示氧化硅, s 表示晶体, h 表示加热器, i 表示其它固体, m 表示熔点. 边界条件为: 在所有固体表面, 熔体或气体满足无滑移条件, 即 $u=0, v=0$.

在坩埚与熔体的界面: $x_O = 0.01 \times e^{(7.8-22370/T)}$; $\mathbf{n} \cdot \mathbf{J} = 0$.

在熔体与气体的自由界面: $\mathbf{n} \cdot \mathbf{v}_l = 0$; $\mathbf{n} \cdot \mathbf{v}_g = 0$; $\boldsymbol{\tau}_l : \mathbf{n} \mathbf{t} - \boldsymbol{\tau}_g : \mathbf{n} \mathbf{t} = \gamma_T \nabla T_l \cdot \mathbf{t}$; $\mathbf{t} \cdot \mathbf{v}_l - \mathbf{t} \cdot \mathbf{v}_g = 0$; $-\lambda_l \mathbf{n} \cdot \nabla T_l = -\lambda_g \mathbf{n} \cdot \nabla T_g + q_{rad,l}$; $y_{SiO} = 101325 x_O e^{(17.8-21000.0/T)} / P_0$; $-c_g D_{SiO} \mathbf{n} \cdot \nabla y_{SiO} = -c_l D_O \mathbf{n} \cdot \nabla x_O$; $\mathbf{n} \cdot \mathbf{J}_l = 0$.

在熔体与晶体的界面: $\lambda_l \mathbf{n} \cdot \nabla T_l - \lambda_s \mathbf{n} \cdot \nabla T_s = \rho_s V_s \Delta H_s \mathbf{n} \cdot \mathbf{e}_z$; $T_l = T_s = T_m$; $\mathbf{n} \cdot \nabla x_O =$

$$V_{s,n}(1-k)x_0/D_0; \mathbf{n} \cdot \mathbf{J}_1 - \mathbf{n} \cdot \mathbf{J}_s = 0.$$

在氩气的入口处: $u_g=0; v_g=v_{in}; T_g=T_{g0}; y_{SiO}=0$. 在氩气的出口处: $\tau \cdot \mathbf{n}=0; \mathbf{n} \cdot \nabla T_g=0; \partial y_{SiO}/\partial z=0$. 在其它暴露表面: $-\lambda_i \mathbf{n} \cdot \nabla T_i = -\lambda_g \mathbf{n} \cdot \nabla T_g + q_{rad,i}$. 在晶体外壁: $\mathbf{n} \cdot \mathbf{J}_s=0$. 其中 \mathbf{n} 为界面单位法向矢量, \mathbf{t} 为界面单位切向矢量, γ_T 为熔体表面张力温度系数, ΔH_s 为熔体熔解热. 结晶界面形状由 $T_l=T_s=T_m$ 确定, 即界面温度为熔点温度. 上式中 $q_{rad,i} = \varepsilon_i \sigma_B \left[T_i^4 - \left(\sum_j A_j \varepsilon_j T_j^4 G_{ji} \right) / A_i / \varepsilon_i \right]$ 为表面单元间的净辐射换热量, 其中 ε_i 为发射率, σ_B 为 Boltzman 常数; G_{ji} 及炉内任意两个表面元间的角系数都按文献 [8] 提供的方法计算.

采用流线上风 Petrov-Galerkin 有限元方法求解上述全局流动和传输问题, 计算区域采用等参四边形单元离散, 在每个离散单元, 温度和速度矢量都用双线性试函数 ϕ 近似, 而压力被处理成常数, 单元数、节点数和变量数分别为 54542、55107 和 286428. 在计算过程中, 炉子的几何结构、外壁温度、加热器功率、磁场强度、以及气体流量和压力给定, 而炉内温度分布、气体和熔体速度、电流势分布、晶体提拉速度及结晶界面位置等则采用 Newton-Raphson 方法通过联立求解一组非线性代数方程组确定. 典型的计算条件和物性参数与文献 [5,6] 相同.

2 结果与讨论

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保持在 1.1 mm/min 左右, 提拉速度的误差控制在 0.08 mm/min 以内. 在轴对称稳态流动条件下, 速度场可以用流函数 Ψ 来表示, 其定义为: $u = (1/r) \partial \Psi / \partial z, v = -(1/r) \partial \Psi / \partial r$.

轴向磁场对气相流动过程的影响极小, 氩气总是从炉子顶部同心圆环流道进入, 在上部腔室中形成一个大的自然对流涡胞. 对于常规 Cz 炉, 在熔体自由界面的上部, 气体的流动极慢, 对熔体流型的影响较小; 加装气体导板后, 所有气体都在导板的引导下流经熔体的自由表面, 从而在自由表面上产生一个较大的切向应力, 改变熔体流型 (文献 [5] 图 2).

2.1 常规 Cz 炉内热区

图 1 给出了常规单晶硅 Cz 炉内热区的等温线分布 (左侧)、熔体内等流函数线分布和熔体-气体界面上部的气体流动矢量场 (右侧). 在图 1a 中, 熔体的流动由浮力和热毛细力驱动, 而在图 1b 中, 熔体的流动由浮力、热毛细力和磁场作用时的 Lorentz 力联合驱动. 在两种情况下, 在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; 同时, 从熔池内的等温线分布形状可以发现, 在没有磁场时, 尽管硅熔体的 Pr 数很小 ($Pr=0.01$), 熔体的流动对池内温度分布的影响也不容忽视, 此时单纯的导热模型并不能反映熔体内的真实传热过程; 相反, 当存在轴向磁场时, Lorentz 力的作用极大地削弱了熔体内的流动, 其温度呈导热型分布.

图 2 给出了轴向磁场对常规 Cz 炉单晶硅生长过程的影响. 显然, 由于 Lorentz 力的作用, 熔体的流动被抑制, 熔体内的最大流函数 Ψ_{max} 随着磁场强度的增大而急剧减小; 流动被削弱使结晶界面的形状变得更为平坦, δz (结晶界面外缘轴向坐标与中心轴向坐标之差) 减小 (图 2a). 因此, 为了维持相同的晶体提拉速度, 必须提高加热器的功率 P . 熔体内的最高温度上升, 相应地通过熔体自由界面的温差 δT 也提高 (图 2b); 另一方面, 由于结晶界面变得更为平坦, 结晶面中心处的轴向温度梯度 $(\partial T / \partial z)_c$ 增大. 同时, 由于熔池内的总体温度升高, 在熔体与坩埚的界面有更多的氧溶解到熔体中. 这些溶解的氧在表面热毛细力的作用下被输送到结晶界面, 使结晶界面处的平均氧浓度 $[O]_{ave}$ 增大 (图 2c).

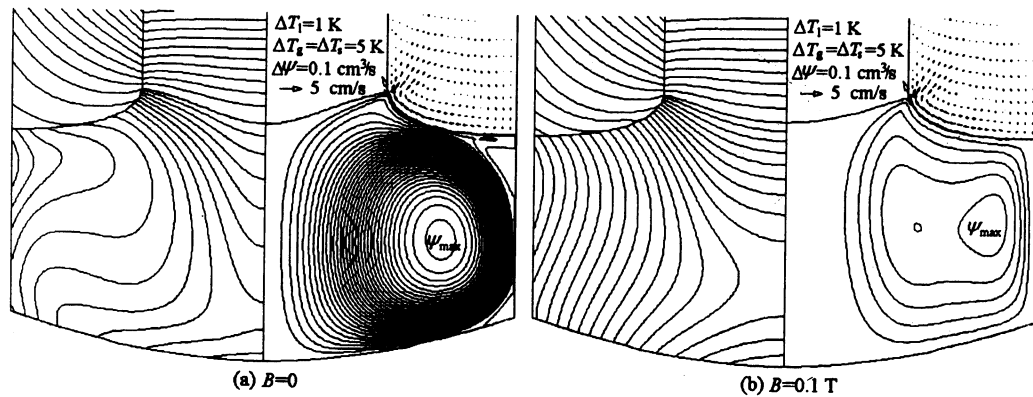


图 1 常规 Cz 炉内热区的等温线、熔体内等流函数线和熔体 - 气体界面上部的气体流动矢量场

Fig.1 Isotherms in hot zone, contours of stream function and the gas flow vectors above the melt/gas interface in conventional Cz furnace

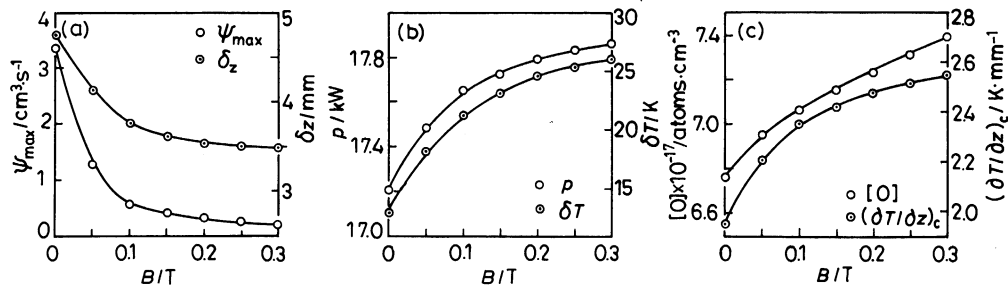


图 2 常规 Cz 炉内轴向磁场的影响

Fig.2 Effect of the axial magnetic field in conventional Cz furnace

2.2 具有气体导板 Cz 炉内热区

图 3 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)、熔体内等流函数线分布和熔体 - 气体界面上部的气体流动矢量场 (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. 因此, 在自由表面上会产生一个较大的切向应力, 在熔体自由表面附近驱动一个顺时针方向旋转的涡胞 (图 3a); 当存在轴向磁场时, 熔体的整体流动被极大的抑制, 池内最大流函数减小, 相应的自由表面附近顺时针方向旋转的涡胞也被削弱 (图 3b).

对于具有气体导板的 Cz 炉, 在单晶硅的生长过程中, 由于熔体的流动被 Lorentz 力抑制, 熔体内的最大流函数 ψ_{\max} 随着磁场强度的增加而急剧减小, 结晶界面形状也变得更为平坦, 结晶面中心处的轴向温度梯度亦增大. 为了维持相同的晶体提拉速度, 加热器的功率 P 也必然增加, 相应地通过熔体自由界面的温差 δT 也会增大 (图 4a 和 4b). 当没有磁场时, 在熔体的自由表面附近顺时针方向旋转的涡胞导致一个大低氧浓度区的形成, 其中低氧浓度的熔体能在 Marangoni 效应作用下有效地传至结晶界面. 与此同时, 坩埚侧壁附近的高氧浓度的熔体也在强烈的自然对

流涡胞的作用下沿方向相反的两个涡胞的交界区域输送至结晶界面. 当存在磁场时, 由于自然对流涡胞被极大地削弱, 高氧浓度熔体的输送大大减小. 因此, 随着磁场强度的增加, 结晶界面平均氧浓度会下降 (图 4c).

气体导板的另一作用是能有效地减小晶体表面的辐射热损失, 降低加热器功率消耗. 比较图 2 和图 4 可以发现, 与常规单晶硅 Cz 炉相比, 具有气体导板的单晶硅 Cz 炉加热器功率明显减小, 通过熔体自由界面的温差 δT 也减小, 使其轴向温度梯度降低.

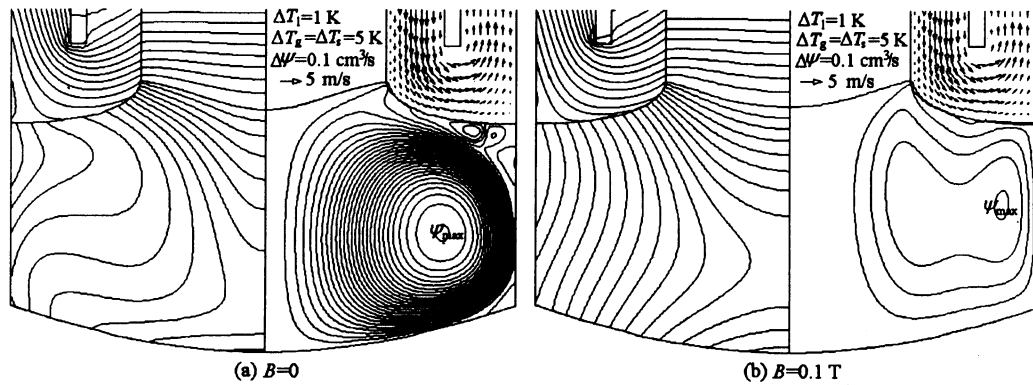


图 3 具有气体导板 Cz 炉内热区的等温线、熔体内等流函数线和熔体-气体界面上部的的气体流动矢量场

Fig.3 Isotherms in hot zone, contours of stream function and the gas flow vectors above the melt/gas interface in Cz furnace with gas guide

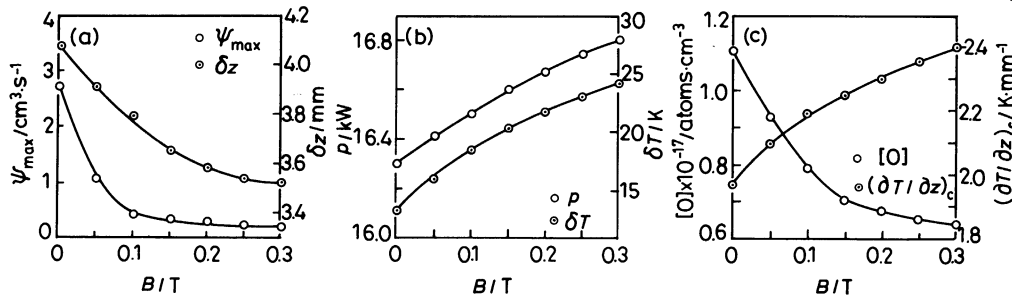


图 4 具有气体导板的 Cz 炉内轴向磁场的影响

Fig.4 Effect of the axial magnetic field in Cz furnaces with gas guide

3 结 论

在小型硅单晶 Cz 炉中, 轴向磁场可有效地抑制熔体内的流动过程, 使结晶界面变得更为平坦, 但是使通过熔体自由界面的温差和结晶界面晶体内的轴向温度梯度增大; 与常规 Cz 炉轴向磁场使结晶界面的平均氧浓度增大不同, 具有气体导板的 Cz 炉内轴向磁场使结晶界面的平均氧浓度减小.

参 考 文 献

- 1 A.E.Organ, N.Riley, J. Crystal Growth, **82**, 465(1987)
- 2 K.Kakimoto, K.W.Yi, M.Eguchi, J. Crystal Growth, **163**, 238(1996)
- 3 K.Kakimoto, H.Ozoe, J. Crystal Growth, **212**, 429(2000)
- 4 ZHANG Weiliang, SUN Junsheng, ZHANG Enhuang, Chinese Journal of Materials Research, **15**(5), 455(2001)
(张维连, 孙军生, 张恩怀, 材料研究学报, **15**(5), 455(2001))
- 5 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))
- 6 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))
- 7 D.E.Bornside, R.A.Brown, T.Fujiwara, H.Fujiwara, T.Kubo, J. Electrochem. Soc., **142**, 2790(1995)
- 8 H.Honda, N.Imaishi, T.Tsukada, M.Hozawa, J. Chem. Eng. Jap., **25**, 84(1992)