

Numerical Simulation of the Optimized Hot Zone Structure of the Multi-Crystalline Silicon Directional Solidification Furnace for Photovoltaics

Daoren Gong^{1,2}, Zhizhong Yuan^{1*}, Minwei Xu², Wen Zhao², Qishen You¹, Shuhao Yu¹, Jia Zhu¹

¹School of Materials Science and Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang

²State Key Laboratory of Photoelectric Product Testing, Yangzhou Photoelectric Products Testing Center, Yangzhou

Email: yzzjs@mail.ujs.edu.cn

Received: Jul. 18th, 2014; revised: Aug. 15th, 2014; accepted: Aug. 23rd, 2014

Copyright © 2014 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

Abstract

The hot zone of the directional solidification multi-crystalline silicon furnace is extremely important to the quality of multi-crystalline silicon. In this paper, numerical simulation was carried out by using CGSim on the added heat preservation structures in the bottom edges and sidewalls of the hot zone and its effects on the temperature field, flow field and interface were analyzed. Simulation results show that, after the optimization of the hot zone, isotherms around the bottom edges and the sidewalls become flat and the flow of the molten silicon is better to remove the impurities. Therefore, the quality of the multi-crystalline silicon by directional solidification is improved.

Keywords

Photovoltaics, Multi-Crystalline Silicon, Hot Zone, Numerical Simulation, Directional Solidification

多晶硅定向凝固铸锭炉热场改进数值模拟研究

龚道仁^{1,2}, 袁志钟^{1*}, 徐敏伟², 赵文², 尤奇燊¹, 喻书豪¹, 朱家¹

*通讯作者。

¹江苏大学材料科学与工程学院，镇江

²扬州光电产品检测中心，国家级光电产品检测重点实验室，扬州

Email: *yzzjs@mail.ujs.edu.cn

收稿日期：2014年7月18日；修回日期：2014年8月15日；录用日期：2014年8月23日

摘要

多晶硅定向凝固铸造炉的热场对于生长高质量的多晶硅极为重要。本文利用CGSim软件对多晶硅铸造炉热场的底部边缘、侧边增加保温材料的改进并进行了数值模拟研究，与未改进的热场进行了对比，分析了这些改进对温场、流场和固液生长界面的影响。模拟结果表明，热场改进后，等温线在坩埚底部边缘和侧边部位变得平缓，抑制了坩埚底部边缘的散热以及边缘横向晶的产生，熔体流动更加有利于杂质排出，多晶硅的定向凝固生长质量得到了提高。

关键词

太阳能，多晶硅，热场，数值模拟，定向凝固

1. 引言

多晶硅太阳能电池由于产量大、性价比高，占据着约50%的光伏产品市场份额[1]。目前光伏工业界主流的多晶硅晶体生长工艺采用定向凝固的方法，多晶硅晶粒从正方石英坩埚底部开始向上定向生长，多晶硅晶粒的晶界竖直向上。这种工艺的优点是降低了多晶硅晶界对电池片效率的影响、利于排出杂质、工艺可控程度较高。多晶硅铸造晶粒的尺寸及组织形态与多晶硅电池的性能有着密切的联系，晶粒尺寸均一、生长方向一致则有利于成为高质量的多晶硅片，从而提高多晶硅太阳能电池的效率[2]-[4]。多晶硅晶粒大小和组织形态，主要取决于多晶硅晶体生长过程中的固液界面。根据定向凝固过程传热的不同，会出现凹形、凸形和平面三种不同的固液界面。非平直的固液界面均能导致晶体生长方向偏离轴向。固液界面凹凸程度越严重，晶体的生长方向偏离轴向的程度就越明显，铸造的内应力越大，破裂的倾向就越大，而且，固液界面上凸度过高，则容易造成微晶等缺陷[5]。因此，微凸的固液界面既有利于竖直向上的多晶硅晶粒的生长，也有利于杂质向硅锭边缘排出，从而可以提高晶锭的晶体质量[6][7]。而固液界面等参数很大程度上取决于多晶硅铸造炉的热场设计。以往热场设计都是通过实验来调整，这需要很高的成本及很长的验证时间。同时，由于铸造炉内部很高的温度(最高温度>1550℃)，所以得到炉体内部的温度分布、熔体中的固液界面就变得非常困难。数值模拟技术的出现为更好地理解多晶硅铸造炉中熔体凝固过程中的传热、传质以及温场、流场的分布提供了有力的支持，已经成为学术界和产业界重要的研究和开发手段[8]-[10]。Yingyang Teng等人[11][12]模拟发现，在增加导流管之后，增强了氩气将熔体表面的SiO、CO气体带走的能力，降低了多晶硅中氧、碳的杂质含量，并增强了熔体表面的散热，有利于形成微凸固液界面。Canglin Ding等人[13]模拟了一种坩埚基座，结果显示，熔体中的垂直温度梯度和固液界面的平坦度都得到了优化，利于有籽晶的高效多晶硅的生长。A. Black等人[14]对类单晶的多晶硅生长技术进行了模拟，缩短了硅料熔化的时间，减少了坩埚底部Fe等杂质的反向扩散，减少了内应力，从而降低了多晶硅中位错密度。Zhaoyang Li等人[15]数值模拟了多晶硅坩埚顶盖对定向凝固的影响，发现盖板会延长化料时间却缩短长晶时间。

一般而言，底面为正方形的坩埚放置在多晶硅铸锭炉内部的散热块(DS 块)上，坩埚底部的四个边角以及四个侧壁往往在常规热场中的散热较快，因而促使了坩埚底部四周、坩埚壁附近的多晶硅晶粒的快速、横向生长，导致无法获得竖直向上的定向凝固多晶硅晶粒，杂质也不能排出到铸锭上部及边缘。这是多晶硅铸锭炉热场的主要问题。因此，本文为了获得平坦的多晶硅晶体生长的固液界面，获得晶粒尺寸均一、定向生长的高质量多晶硅，对铸锭炉热场底部、侧壁进行了改进，并利用计算机数值模拟进行对比验证。

2. 实验

本次实验模拟采用 STR 公司开发的晶体生长专业模拟软件 CGSim，该软件用于蓝宝石晶体生长 [16]-[18]、单晶硅生长 [19]-[22]、多晶硅铸锭 [11]-[14] 的数值模拟研究已被大量文献所报道，应用范围非常广泛。本文以 GT Advanced Technology 公司的 DSS450 多晶硅铸锭炉为参考，该种设备即工业上常用的 G5 型多晶硅铸锭炉(即开方后得到 25 块 156 mm × 156 mm 截面的晶砖)。首先，量取其热场的实际尺寸并做了适当简化，输入 CGSim 软件中建立了模型，如图 1 所示。铸锭炉的物理模型采用简化的二维轴对称模型，只显示出一半图形结构即可。众所周知，三维数值模拟能够很好地得到铸锭炉内的熔体流动 [23]。但是，三维模拟需要消耗大量的计算时间，而目前的研究结果已经证明二维模拟已经能够很好地预测多晶硅炉体内的传热传质 [24]。在模拟计算的物理模型中，考虑了晶体、熔体和坩埚内的能量守恒，熔体和气体中的对流、各表面之间的辐射、结晶潜热、高温熔体内的湍流流动等。

模拟采用的物性参数如表 1 所示，数据来自文献 [25]。模拟的最重要参数是等温线、温场流动曲线等。晶粒生长的方向一般是垂直于等温线，同时垂直于固液界面，所以等温线的分布直接影响晶粒的生长方向即晶体生长质量。温场流动曲线则显示了熔体的流动方向，对排出杂质至关重要。

3. 结果与讨论

3.1. 未改进结构模拟结果

3.1.1. 等温线与熔体对流

图 2 是多晶硅铸锭炉的底部区域热场改进前的温度场和流场示意图，其状态是多晶硅的凝固高度约

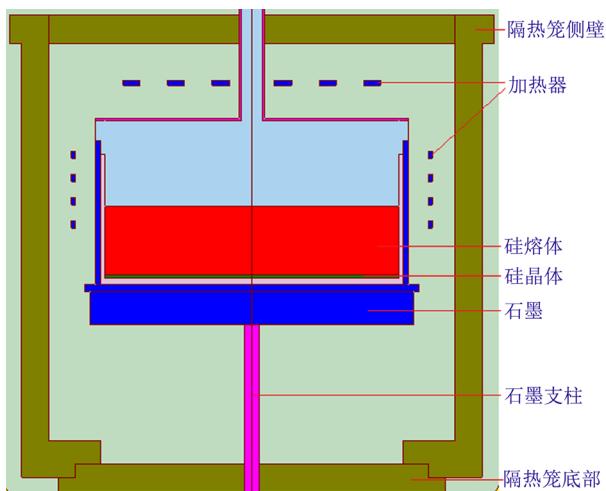


Figure 1. Schematic cross-sectional structure of the multi-crystalline silicon cast furnace

图 1. 多晶硅铸锭炉体结构剖面简图

Table 1. Thermal and physical parameters of multi-crystalline silicon
表 1. 多晶硅的热物性参数

材料	参数	数值
熔体硅	密度(kg/m ³)	2570
	熔点(K)	1685
	热导率(W/(m·K))	66.5
	潜热(J/kg)	1.8×10^6
	比热容(J/(kg·K))	915
	动力粘度(Pa·s)	8×10^{-4}
	发射率	0.3
	晶体硅	
晶体硅	密度(kg/m ³)	2530
	发射率	0.7
	热导率(W/(m·K))	$110.612 - 0.1507T + 0.000109T^2$
	比热容(J/(kg·K))	1000

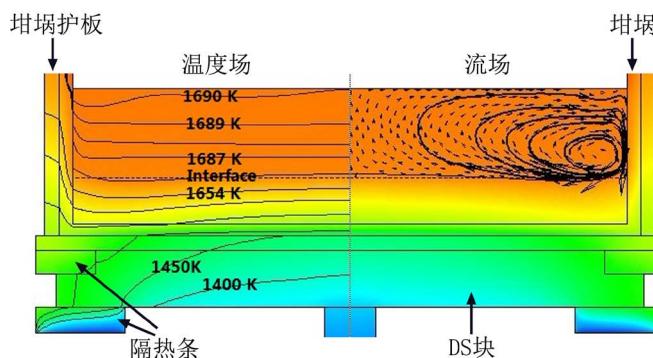


Figure 2. Schematic demonstration of isotherms and flow field of the melt silicon. The dashed line is the solid-melt interface
图 2. 熔体中等温线与流场的示意图。图中的虚线是多晶硅晶体定向凝固高度示意线

110 mm。图中实线为等温线，其意义在于，晶体生长的方向垂直于等温线。图中的虚线为理想固液界面，流动的涡旋用连续曲线标出。实际上，固液界面与等温线大致相同。从图 2 可以看出：等温线在坩埚侧壁、靠近坩埚护板的地方向上翘曲，高于坩埚中心的等温线高度，说明同一高度的情况下，温度在坩埚壁面上偏低，有利于多晶硅晶体的快速偏离竖直向上的生长方向生长；离开坩埚侧壁则等温线趋于平坦，并在中心处稍凸。

对于流场而言，熔体中形成一个对流漩涡，由坩埚壁向下，至熔体中心区域向上，这样的流场将不利于杂质挥发，因为坩埚壁附近、方向向下的涡流，将把硅熔体边缘以及坩埚壁的杂质带入熔体底部并向中心流动。

3.1.2. 生长界面上的 V/G 比值

参数 V/G 比值是用于研究自缺陷的生长动力学而引入的，结晶界面前沿是否会发生组分过冷主要受界面前沿的温度梯度 G、晶体生长速度 V 以及溶质边界层的厚度 δ_c 的影响。V/G 比值越小且溶质边界层厚度 δ_c 越小，越不容易发生组分过冷。较大的 V/G 比，将发生熔体过冷[26]，不利于均匀晶粒多晶硅铸

锭的生长而且会导致微晶产生，产生阴影，从而影响电池效率。图3为热场底部改进之前的温场中固液界面的V/G比图。从图中可以看出V/G比在离坩埚中心300~400 mm时的值最大，在坩埚壁面处下降，继而再度升高。如此不平坦的分布，造成了多晶硅晶粒生长速度的不均匀，容易造成应力集中，也不利于杂质向上分凝排出。

3.2. 热场改进的数值模拟结果

3.2.1. 热场底部改进方案及模拟结果

如图4所示，在保持多晶硅铸锭炉热场其他部分不改变的情况下，仅在DS块四个底边共增加了四段石墨隔热条，目的是减少该部位向侧面的散热，促进竖直向上的多晶硅晶体定向凝固。

从图5为热场底部改进后的等温线和熔体对流曲线，从图中可看出，改进后的等温线和未改进的等温线相比，在DS块边缘，等温线的向下弯曲程度减轻，变得平缓。两种温场将对晶体生长产生不同的影响。未改进的温场等温线，在DS块的四周的温度梯度大，对应此位置的坩埚底部四周的多晶硅晶粒容易先于坩埚中心形核，造成坩埚底部多晶硅形核的初始进程差异过大，也不利于硅熔体中的杂质向边

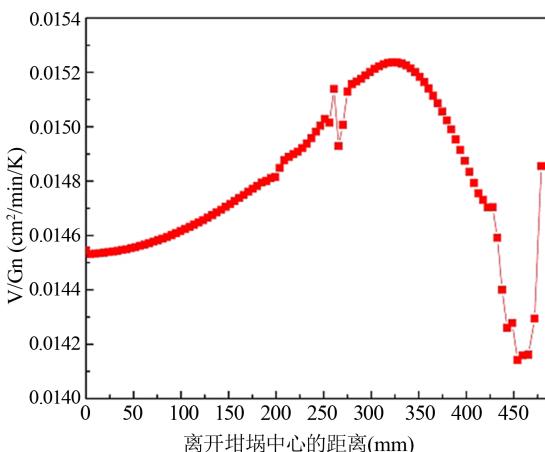


Figure 3. Curve: V/G of the interface
图3. 生长界面上 V/G 值的分布

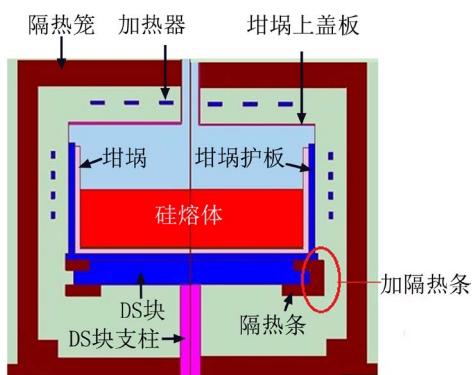


Figure 4. Schematic image of the modified furnace structure. (Left) the original structure; (Right) the structure after the modification

图4. 底部热场改进方案示意图，其中左半图为改进前横截面结构图，右半图为改进后横截面结构图

缘分散。而热场底部改进后，这些现象有所减轻，坩埚底部多晶硅形核的初始进程差异减小，等温线保持向上微凸。

改进后，流场中的涡流分布也不一样，从图5可看出熔体中存在有两个涡流：坩埚中心处小涡流和一个坩埚侧壁面处的大涡流。这样就使熔体的流动方向不同。不同的流动方向将带动杂质流动从而导致杂质分布不一样。改进后的熔体流动将有利于杂质及掺杂剂的均匀分布。

改进后的方案大大减小了V/G比值，从而减少了微晶的产生，进而减少多晶硅铸锭阴影形成的概率。

3.2.2. 热场侧壁改进方案及模拟结果

如图6所示，在多晶硅晶体定向凝固过程中，隔热笼逐渐向上升起，热量从隔热笼底部逐渐扩大的缝隙中流出，造成了从坩埚底部到顶部的温度梯度，从而导致多晶硅从底部开始向上定向凝固结晶，硅

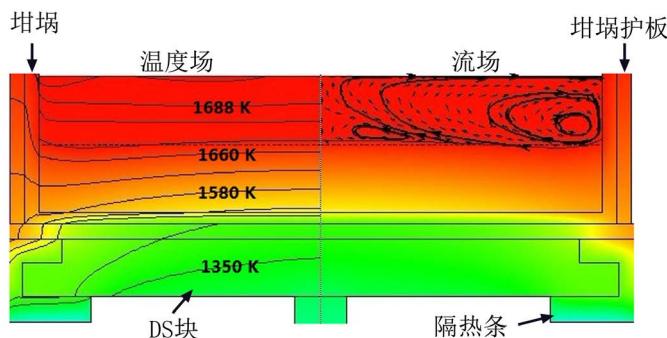


Figure 5. The (left) isotherms and (right) flow field of the modified DS structure. The dash line is the interface of solid and melt. The lines in the left are isotherms

图 5. 热场底部改进后温场等温线(左)和流场(右)示意图，图中虚线是固液界面。左图中实线是等温线

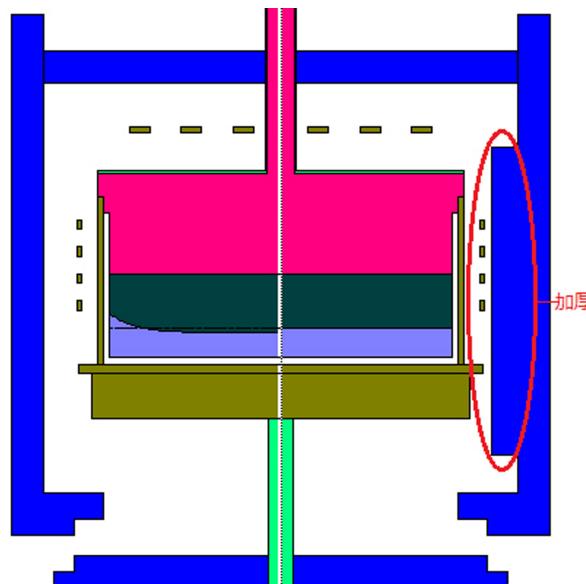


Figure 6. Schematic structures of (left) original and (right) modified side wall of the insulation cage of the hot zone

图 6. 隔热笼侧壁改进前(左)和改进后(右)的铸造炉结构示意图

熔体中出现固液界面。隔热笼的侧部厚度增加，由原来的 90 mm 向内增加到 140 mm，其他部分保持不变。

本文以多晶硅铸锭炉中晶体生长到 80 mm 高度时为例，对其温度分布、流动分布和固液界面进行数值模拟分析。

如图 7 所示为改进前、后铸锭炉内熔体和晶体中的温度分布，图中的实线为等温线，单位：K，虚线是底部向上结晶 80 mm 高度的指示线。改进前：等温线在坩埚中部比较平坦；而在靠近坩埚侧壁的区域，固液界面向上翘起。这样的等温线分布是由于温度较低的石英坩埚壁面造成的，会使熔体容易在壁面处优先形核，产生细小、横向生长的硅晶粒。改进后：等温线明显变得平坦，一直延续到坩埚壁，都没有明显的向上翘起。因此可见，热场隔热笼侧壁厚度的增加，提高了坩埚壁面的温度，降低了坩埚壁面的散热，从而减少了侧壁成核，有利于多晶硅晶体质量的提高。

图 8 为改进前、后熔体的流动状况，可以看出熔体中的涡流由改进前的一个大涡流变为改进后的一大、一小两个涡流。而且改进后熔体中的对流强度明显减弱。这是因为坩埚侧壁处熔体的垂直温度差减小了，熔体的水平温度差也减小了，因此熔体中的对流减弱了。两个涡流的结果虽然减少了熔体对固液界面的影响，但同时也会影响杂质的排除。该涡流变化的影响如何，还需要进一步模拟分析，将在后续工作中进行模拟。

图 9 表示隔热笼侧壁厚度改进前、后多晶硅熔体固液界面的曲线沿着坩埚中心向坩埚侧壁方向的变化情况。固液界面的形状与固液界面处等温线的形状相同，因此从图 9 的固液界面形状可以明显看出：改进前靠近坩埚处的固液界面显著上翘，而靠近坩埚中心处界面突出不够明显。这样的晶体生长状况必然导致靠近坩埚壁的区域长晶过快、晶粒生长方向偏离定向凝固方向，最终造成多晶硅晶粒不均匀、

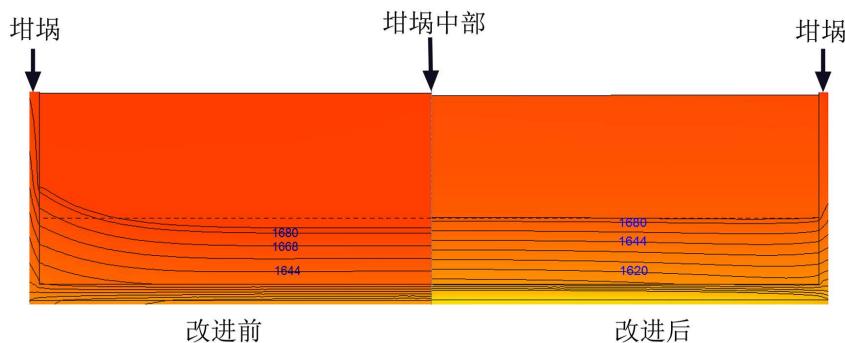


Figure 7. Temperature field of (left) the original and (right) the modified side wall of the insulation cage (in K)

图 7. 隔热笼侧壁改进前(左)和改进后(右)的铸锭炉温场(单位: K)

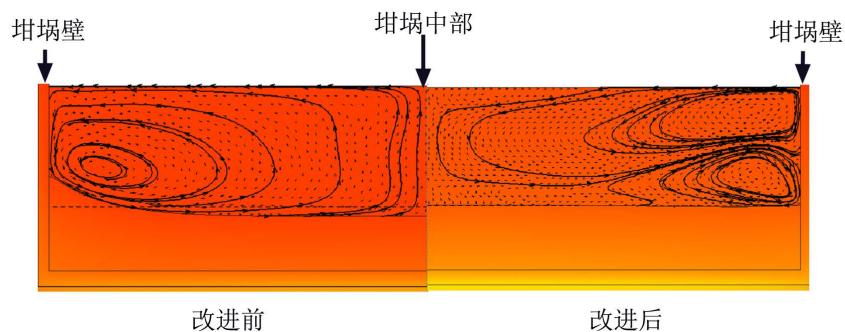


Figure 8. Flow field of (left) the original and (right) the modified side wall of the insulation cage

图 8. 隔热笼侧壁改进前(左)和改进后(右)的铸锭炉流场

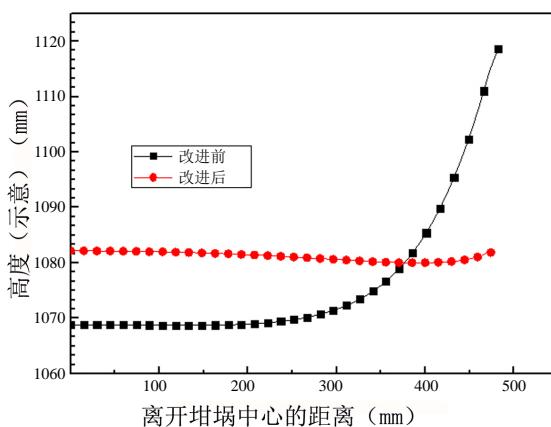


Figure 9. The interfaces of the original and modified side wall of the insulation cage

图 9. 隔热笼侧壁改进前和改进后的硅熔体固液界面形状

多晶硅电池片效率的降低。而改进后的固液界面比较平坦，靠近坩埚处固液界面曲线微微翘起，说明该处的硅晶体生长不是很快，在坩埚中心处的界面略凸出，较适合中心晶体的生长，对形成晶粒尺寸均一、定向生长的多晶硅晶粒非常有益，并有利于利用分凝原理，将杂质向上部和侧部排出。

4. 结论

本文提出两种多晶硅铸造炉热场改进方案，并利用 CGSim 软件，通过数值模拟研究了热场改进前、后的炉体内温场、流场和杂质分布，得出以下结论：

1) 在热场的 DS 块四周边缘增加了保温条，使得坩埚底部四周的温度梯度降低；熔体中的由一个涡流变成两个涡流，使掺杂剂的分布更加均匀。减小了 V/G 比值，从而减少微晶的产生，进而减少了阴影形成的概率。

2) 在热场的隔热笼侧壁部分向内增加了厚度，使得等温线明显变得平坦，甚至在坩埚壁附近也未见明显翘曲。有改进后硅熔体中的对流强度明显减弱，由改进前的一个大涡流变为改进后的两个小涡流。虽然减少了熔体对固液界面的影响，但同时也影响了杂质排除。改进后硅熔体固液界面在坩埚中部凸出率有所增加，明显抑制了在坩埚侧壁附近的翘曲。

通过两种热场改进方法的数值模拟结果，我们可以看出，增加 DS 块四周以及隔热笼侧壁的保温，有利于生长晶粒尺寸均一、生长方向一致的高质量多晶硅，从而提高多晶硅太阳能电池的转化效率，对于促进光伏产业发展具有重要的意义。

基金项目

本研究工作承以下项目资助：1) 江苏检验检疫局科技计划项目：晶体硅光伏组件电致发光(EL)评价方法研究及基于机器视觉自动识别分析的电致发光(EL)测试系统的研制(2013KJ19)，2) 江苏大学第 13 批大学生科研立项(Y13A175)。

参考文献 (References)

- [1] Hering, G. (2011) Year of the tiger. *Photon International*, **3**, 186-218.
- [2] Fujiwara, K., Pan, W., Sawada, K., Tokairin, M., Usami, N., Nose, Y., Nomura, A., Shishido, T. and Nakajima, K. (2006) Directional growth method to obtain high quality polycrystalline silicon from its melt. *Journal of Crystal*

- Growth*, **292**, 282-285.
- [3] Wang, H.Y., Usami, N., Fujiwara, K., Kutsukake, K. and Nakajima, K. (2009) Microstructures of Si multicrystals and their impact on minority carrier diffusion length. *Acta Materialia*, **57**, 3268-3276.
 - [4] Lan, C.W., Lan, W.C., Lee, T.F., Yu, A., Yang, Y.M., Hsu, W.C., Hsu, B. and Yang, A. (2012) Grain control in directional solidification of photovoltaic silicon. *Journal of Crystal Growth*, **360**, 68-75.
 - [5] Zhang, Z.Q. and Huang, Z.F. (2011) Analysis of microcrystal formation in DS-silicon ingot. *Science China Technological Sciences*, **54**, 1475-1480.
 - [6] Wu, B., Stoddard, N., Ma, R.H. and Clark, R. (2008) Bulk multi-crystalline silicon growth for photovoltaic (PV) application. *Journal of Crystal Growth*, **310**, 2178-2184.
 - [7] Teng, Y.Y., Chen, J.C., Lu, C.W. and Chen, C.Y. (2010) The carbon distribution in multi-crystalline silicon ingot growth using directional solidification process. *Journal of Crystal Growth*, **312**, 1282-1290.
 - [8] Steinbach, I., Apel, M., Rettebach, T. and Frank, D. (2002) Numerical simulations for silicon crystallization processes-examples from ingot and ribbon casting. *Solar Energy Material and Solar Cells*, **72**, 59-68.
 - [9] Wu, B., Scott, S., Stoddard, N., Clark, R. and Sholapurwalla, A. (2009) Simulation of silicon casting process for photovoltaic application. *Proceeding of the 2009 TMS Annual Meeting & Exhibition*, 12-19.
 - [10] Teng, Y.Y., Chen, J.C., Lu, C.W., Chen, H.I., Hsu, C. and Chen, C.Y. (2011) Effect of the furnace pressure on oxygen and silicon oxide distributions during the growth of multi-crystalline silicon ingots by the directional solidification process. *Journal of Crystal Growth*, **318**, 224-229.
 - [11] Teng, Y.Y., Chen, J.C., Lu, C.W. and Chen, C.Y. (2012) Numerical investigation of oxygen impurity distribution during multicrystalline silicon crystal growth using gas flow guidance device. *Journal of Crystal Growth*, **360**, 12-17.
 - [12] Teng, Y.Y., Chen, J.C., Huang, B.S. and Chang, C.H. (2014) Numerical simulation of impurity transport under the effect of a gas flow guidance device during the growth of multicrystalline silicon ingots by the directional solidification process. *Journal of Crystal Growth*, **385**, 1-8.
 - [13] Ding, C.L., Huang, M.L., Zhong, G.X., Ming, L. and Huang, X.M. (2014) A design of crucible susceptor for the seeds preservation during a seeded directional solidification process. *Journal of Crystal Growth*, **387**, 73-80.
 - [14] Black, A., Medina, J., Pineiro, A. and Dieguez, E. (2012) Optimizing seeded casting of mono-like silicon crystals through numerical simulation. *Journal of Crystal Growth*, **353**, 12-16.
 - [15] Li, Z.Y., Zhang, Y.F., Hu, Z.Y., Zhou, G.S. and Liu, L.J. (2014) Numerical investigation of the effect of a crucible cover on crystal growth in the industry directional solidification process for silicon ingots. *Journal of Crystal Growth*, **401**, 291-295.
 - [16] Demina, S.E., Bystrova, E.N., Lukanina, M.A., Mamedov, V.M., Yuferev, V.S., Eskov, E.V., Nikolenko, M.V., Postolov, V.S. and Kalaev, V.V. (2007) Numerical analysis of sapphire crystal growth by the Kyropoulos technique. *Optical Materials*, **30**, 62-65.
 - [17] Miyagawa, C., Kobayashi, T., Taishi, T. and Hoshikawa, K. (2014) Development of the vertical Bridgman technique for 6-inch diameter *c*-axis sapphire growth supported by numerical simulation. *Journal of Crystal Growth*, **402**, 83-89.
 - [18] Li, J.Q., Su, X.P., Na, M., Yang, H., Li, J.M., Yu, Y.N. and Mi, J.J. (2006) Influence of gas flow on thermal field and stress during growth of sapphire single crystal using Kyropoulos method. *Rare Metals*, **25**, 260-266.
 - [19] Su, W.J., Zuo, R., Mazaev, K. and Kalaev, V. (2010) Optimization of crystal growth by changes of flow guide, radiation shield and shidewall insulation in Cz Si furnace. *Journal of Crystal Growth*, **312**, 495-501.
 - [20] Su, W.J., Zuo, R., Lu, J.G., Di, C.Y. and X.N. Cheng. (2014) Numerical and experimental studies on the Black Periphery Wafer in Cz Si growth. *Journal of Crystal Growth*, **388**, 42-47.
 - [21] Smirnova, O.V., Durnev, N.V., Shandrakova, K.E., Mizitov, E.L. and Soklakov, V.D. (2008) Optimization of furnace design and growth parameters for Si Cz growth, using numerical simulation. *Journal of Crystal Growth*, **310**, 2185-2191.
 - [22] Chen, J.C., Guo, P.C., Chang, C.H., Teng, Y.Y., Hsu, C., Wang, H.M. and Liu, C.C. (2014) Numerical simulation of oxygen transport during the Czochralski silicon crystal growth with a cusp magnetic field. *Journal of Crystal Growth*, **401**, 888-894.
 - [23] Kullev, A.T., Dumev, N.V. and Kalaev, V.V. (2007) Analysis of 3D unsteady melt flow and crystallization front geometry during a casting process for silicon solar cell. *Journal of Crystal Growth*, **303**, 236-240.
 - [24] (2010) CGSIMTM, Flow Module, Ver. 3.11, Theory Manual. Semiconductor Technology Research, Inc.
<http://www.semitech.us/>
 - [25] (2008) STR GROUP, CGSIM MATERIAL data base, v.8.12 [DB\CD]. ST. Petersburg, Richmond.
<http://www.semitech.us/>
 - [26] 姚连增 (1995) 晶体生长基础. 中国科学与技术大学出版社, 合肥, 247-249.