

# 半导体硅熔体的有效(磁)黏度\*

张 雯 刘彩池 王海云 徐岳生<sup>†</sup> 石义情

(河北工业大学信息功能材料研究所, 天津 300130)

(2007 年 3 月 27 日收到, 2007 年 11 月 16 日收到修改稿)

用钕铁硼(NdFeB)永磁材料构建“魔环”结构的永磁体,向直拉硅生长的熔体所在空间引入磁场,采用回转振荡法测量不同磁场强度下硅熔体的有效黏度(磁黏度).在温度一定时,测得的磁黏度随着磁场强度的增加而增加,二者呈抛物线关系.熔硅温度升高,磁场影响加剧.1490—1610 °C 温度区间内,磁黏度有异常变化.当引入磁场强度为 0.068 T 时,熔硅有效黏度比原黏度增加 2—3 个数量级,证明引入磁场是硅单晶大直径生长时,抑制熔硅热对流的有效手段.

关键词:硅熔体,有效(磁)黏度,魔环永磁体,回转振荡法

PACC: 8110F, 6520, 6620, 6810C

## 1. 引 言

硅单晶向大直径发展,投料量急剧增加.制备  $\Phi 12$  英寸硅单晶,投料约为 300 kg.大体积熔硅产生强烈热对流,将严重影响硅单晶质量,甚至破坏单晶生长.硅熔体作为晶体生长的环境相,愈来愈受到人们的重视<sup>[1,2]</sup>.向熔硅所在空间引入磁场,利用导电熔体在磁场中运动受到的洛伦兹力(Lorentz's force),阻滞熔硅流动,这是目前生长  $\geq \Phi 6$  英寸硅单晶行之有效的办法<sup>[3-6]</sup>.目前对磁场抑制热对流机理、控氧机理和磁场对晶体生长机理的影响等,都还在研究中.此外,开展大直径硅单晶计算机动态数值模拟,需要获得熔硅物性与结构的准确数据.磁场下熔硅物性参数与结构的变化,是计算机模拟与研究生长机理的重要信息.

高温下测量熔体的性质很困难,主要问题是:合适的探测方法的选择,容器和测量探头的选择,热对流影响的排除,防止样品氧化的真空或充气条件,样品挥发的控制等.虽然在实验方面对高温熔体的研究存在不少困难,但由于高温熔体具有丰富的物理内涵和重要的应用背景,从而引起人们广泛的研究兴趣.近年来对高温熔体研究较多的是熔体的结构

及其性质,主要集中于液态半导体、液体的金属-非金属转变和表面熔化等.随着实验技术的发展和实验方法的改进,对熔体的研究取得了一些进展<sup>[7,8]</sup>.国内中科院物理所进行了半导体 GaSb 和 InSb 熔体的物性研究<sup>[9]</sup>.国外开展这方面的工作较多,实验上主要是用 X 射线和中子散射研究熔体的结构,理论上是对熔体结构进行数值模拟.1990 年在欧洲召开了首届国际液态物理会议.日本科技厅于 1991 年投资 2000 万美元,组织了“木村熔体动态研究计划”<sup>[10]</sup>,主要开展半导体硅熔体的物理性质、结构及熔体内输运过程的研究.但要全面了解硅熔体物性及结构的变化与过程,目前积累的实验数据还远远不够,还必须应用多种实验手段,并结合计算机对硅熔体进行模拟.

本文首次应用回转振动法研究了磁场下影响硅熔体输运过程的重要参数——有效黏度的变化规律及其所反映的熔硅结构的可能变化,对磁场下制备大直径硅单晶,具有重要参考意义.

## 2. 实验装置

### 2.1. 测量硅熔体在水平磁场中有效黏度的装置和方法

将可调节的水平磁场装在回转振动法测量仪上

\* 河北省自然科学基金(批准号:503054)、国家自然科学基金(批准号:50372016)和河北工业大学博士启动基金和教育部科学研究重点项目(批准号:205017)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: yueshengxu@eyou.com, zhangwen@hebut.edu.cn

(日本东京株式会社生产的高温低黏度黏度仪, RMEOTRONI-VII) 就构成了水平磁场下回转振动法测量硅熔体有效黏度的装置, 测试设备示意图如图 1 所示.

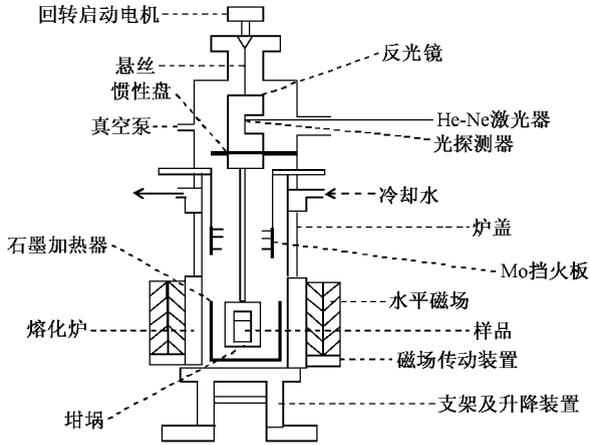


图 1 带水平磁场的高温黏度测试设备示意图

将一定尺寸的硅棒样品放入坩埚内, 由石墨加热器加热熔化, 根据实验要求, 调整水平磁场强度和

测试温度, 启动回转电机, 通过悬丝带动盛有熔硅的坩埚转动. 记录坩埚回转振动的时间, 熔硅的高度、直径和密度等信息, 使用测量仪中的软件, 计算出熔硅有效黏度.

## 2.2. 磁场的选择和引入

本研究采用钕铁硼(NdFeB)永磁材料构成磁环, 可以向环的内部引入呈水平分布的磁场:

$$B = B_r I_n R_2 / R_1, \quad (1)$$

其中  $B$  为引入磁环内部空间的水平磁场强度,  $B_r$  为单块永磁体的磁场强度,  $R_2$  为磁环的外径,  $R_1$  为磁环的内径.

设计了两个直径不同的磁环, 每个磁环由若干个磁化方向不同的小磁块组成. 小磁环外径正好套入大磁环的内径中, 构成内外磁环可以相对转动的“魔环”结构<sup>[1]</sup>. 根据磁场叠加原理, 转动改变两环的相对位置, 就可以连续调节内环空间中引入的磁场强度值. 本研究中  $B$  值从 0—0.27 T 连续可调. 内外永磁环及其磁化方向如图 2 和图 3 所示.

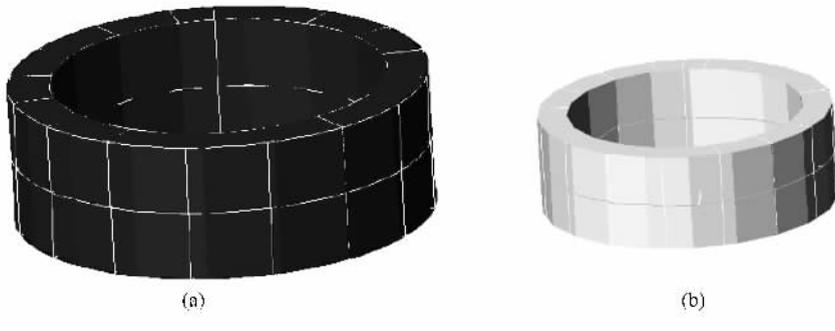


图 2 内外永磁环 (a)外环 (b)内环

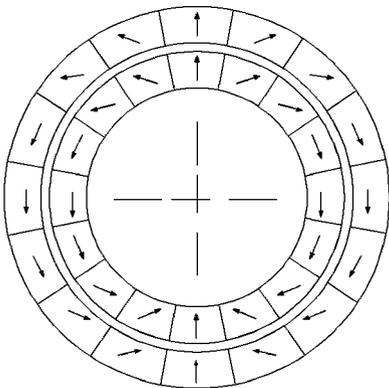


图 3 永磁环小块磁体的磁化方向

## 2.3. 实验误差

由测试设备示意图图 1 可以得知, 本测量设备的测量误差与无磁场测量设备的误差是相同的, 为  $\pm 3.0\%$ .

## 3. 实验结果

### 3.1. 温度 1420 °C 时磁场对熔硅有效黏度的影响

在零磁场下, 熔硅表现出来的黏度为本征黏度 ( $\eta_0$ ). 当在熔硅所在的空间引入磁场时, 熔硅的流动

将受到洛伦兹力的阻滞,等效于黏度增加.此时,测得的有效黏度为有效黏度( $\eta_{\text{eff}}$ ),也称为磁黏度.由于硅单晶生长都在硅熔点1420℃进行(有一定过冷度),因此,首先考虑在硅熔点附近,改变引入的磁场强度 $B$ 值,测量其有效黏度的变化.图4为有效黏度随磁场强度的变化,可以看到, $\eta_{\text{eff}}$ 和 $B$ 值之间呈抛物线关系.

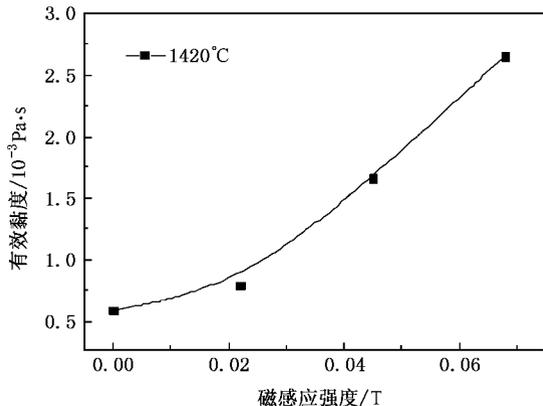


图4 硅熔点(1420℃)处熔硅的有效黏度与磁感应强度的关系

### 3.2. 不同温度下磁场强度对有效黏度的影响

1)在1430—1470℃温区, $B$ 增加, $\eta_{\text{eff}}$ 增大.温度升高,黏度增加.如图5所示.

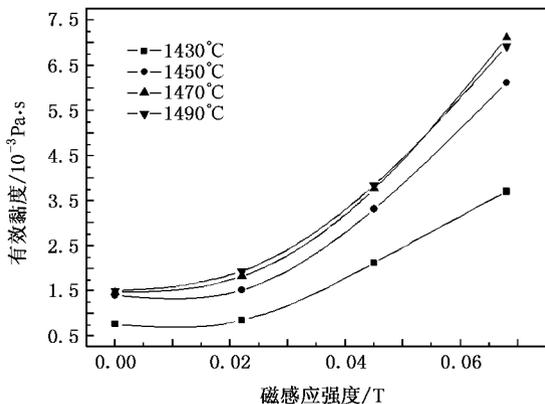


图5 硅熔体的有效黏度与磁感应强度的关系(1430—1470℃)

2)在1490—1610℃温区, $B$ 增加, $\eta_{\text{eff}}$ 有高有低,起伏变化.此时看不出温度的明显影响.在 $B$ 相同时,不同温度测得的 $\eta_{\text{eff}}$ 变化不大,如图6所示.

3)在1610—1690℃温区,磁场 $B$ 增加,有效黏度 $\eta_{\text{eff}}$ 增大.表现出 $B$ 对 $\eta_{\text{eff}}$ 的影响变小,使得高温时 $B$ 与 $\eta_{\text{eff}}$ 二者的抛物线愈来愈平坦,表明温度对黏度

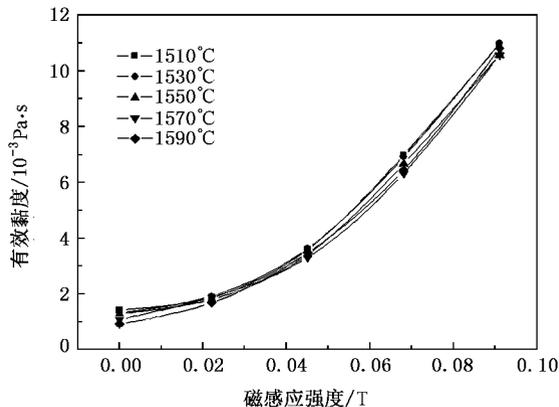


图6 硅熔体的有效黏度与磁感应强度的关系(1490—1610℃)

的影响减弱,如图7所示.

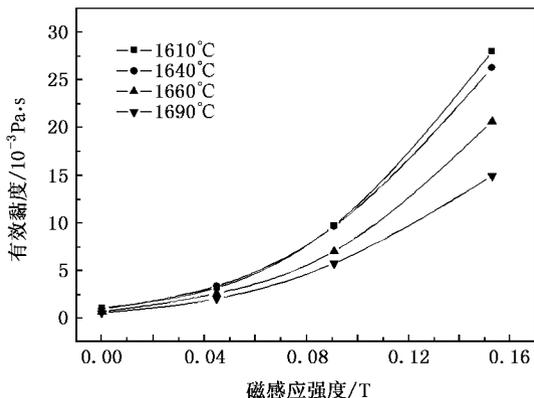


图7 高温熔硅的有效黏度与磁感应强度的关系(1610—1690℃)

### 3.3. 磁场条件下熔硅有效黏度随测试温度的异常变化

如图8所示,在0.0022 T磁场条件下, $\eta_{\text{eff}}$ 随测试温度升高而增加,在1490℃达到最大值后,随温度的变化开始下降或上升,在1610℃达到第二个峰

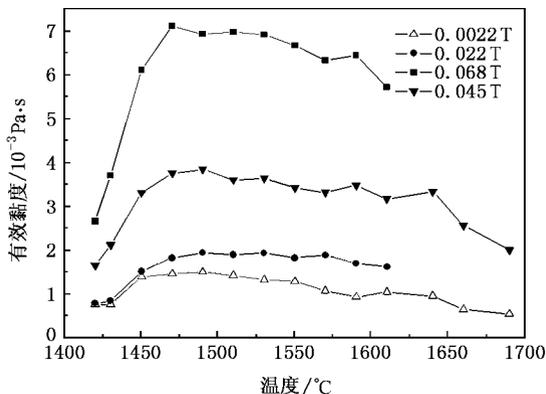


图8 硅熔体的有效黏度随温度的异常变化

值 0.022 0.045 0.068 T 的情况和 0.022 T 的情况基本相似,且第一个最大值(峰值)对应的温度均为 1490 °C,只是第二个峰值对应的温度有所不同。

考虑测量仪器的误差范围,经过计算可以认为,图 8 中的所有第二峰已在实验误差范围内,可以认为仅第一峰是可信的,第二峰可以认为是实验误差造成的。

## 4. 讨 论

根据金属材料有关熔体结构的理论,可对实验结果做出合理解释。固体熔化后变成熔体,它是由众多微小尺寸的原晶体结构构成的“原子团”组成;“原子团”之间的相对运动,表现为熔体的流动性和黏滞力等。随着熔体温度升高,微小结构尺寸的“原子团”变小,直至最后消失。熔体最后完全由单原子或分子组成,此时价键、配位数等完全不复存在。

### 4.1. 磁场强度对黏滞系数的影响

根据磁流体力学有效黏滞系数(磁黏滞系数)的表达式:

$$\eta_{\text{eff}} = \eta_0 + (\mu B b)^2 \sigma / \rho, \quad (2)$$

其中  $\eta_{\text{eff}}$  为有效黏滞系数,  $\eta_0$  为无磁场时熔体的黏滞系数,  $\mu$  为磁导率( $\mu = 1$ ),  $B$  为熔体所在空间的磁场强度,  $b$  为熔体的特征尺寸,  $\sigma$  为熔体电导率。

设  $b^2 \cdot \sigma / \rho = A$ , 在坩埚半径不变、温度一定的条件下,  $A$  为定值,则有

$$\eta_{\text{eff}} = \eta_0 + AB^2, \quad (3)$$

(3) 式表示了  $\eta_{\text{eff}}$  与  $B$  的典型抛物线关系,这与实验结果非常符合。

在  $B$  一定的条件下,当熔体温度升高,  $\sigma$  显著增加,而  $\rho$  降低,使得  $A$  值增加,所以抛物线变得陡峭。

从某种意义上讲,向熔体空间引入磁场以后,测得的  $\eta_{\text{eff}}$  除反映硅熔体的内摩擦力外,还反映洛伦兹力(Lorentz force)的作用。 $\eta_{\text{eff}}$  的大小是内摩擦力和洛伦兹力  $f$  ( $f = qv \times B$ ) 共同作用的结果。如果  $B$  和  $\sigma$  同时增加,洛伦兹力  $f$  快速增加,使得抛物线更加陡峭。这一点也可以从(2)式反映出来,当  $B$  和  $\sigma$  增加,  $\eta_{\text{eff}}$  将快速增加。

### 4.2. 熔硅有效黏度的异常变化

熔体有效黏滞系数随熔体温度上升而下降,而在引入磁场条件下,情况却出现异常。从(2)式出发,

可做如下分析:

当  $B$  一定时,随着硅熔体温度升高,熔体中“原子团”的尺寸在不断变小,产生了更多的载流子,导致其电导率  $\sigma$  很快上升,对  $\eta_{\text{eff}}$  的影响占主导地位(内摩擦力下降处于次要地位),熔体有效黏滞系数必然上升,但“原子团”内仍维持着近程有序的状态。有效黏滞系数在峰值时,温度为 1490 °C。当温度进一步升高,近程有序范围逐渐缩小,内摩擦力逐渐降低,而电导率上升的趋势变缓,因此  $\eta_{\text{eff}}$  趋近于无变化,直到温度升高使“原子团”完全消失,熔体由单个硅原子组成,载流子数量达到极值,电导率有显著上升,内摩擦力逐渐降低,叠加的结果,使  $\eta_{\text{eff}}$  有起伏变化。最后随温度上升,内摩擦力下降又是主要的,而  $\sigma$  变化较小,使得  $\eta_{\text{eff}}$  又缓慢下降。因此,  $\eta_{\text{eff}}$  的变化可归结为熔体内部结构的变化,导致电导率(洛伦兹力)与内摩擦力交互变换,从而使  $\eta_{\text{eff}}$  异常增大(1490 °C),而后在较大的温度区间内,  $\eta_{\text{eff}}$  出现起伏。在  $B$  值不变时,对应的峰值温度是 1490 °C,而黏度起伏的温度区间为 1490—1610 °C。

上述黏度的变化,反映熔体结构变化的推论,还可以在图 6 中温度处于 1490—1610 °C 范围内,反映  $\eta_{\text{eff}}$  与磁感应强度  $B$  关系的几条抛物线几乎重合这一事实中得到证实。如前所述,由于测得的  $\eta_{\text{eff}}$  是内摩擦力和洛伦兹力共同作用的结果,并且该二力的大小是与熔体内部结构(近程有序、配位数)的变化有关。因此,熔体内部结构变化的结果,造成了熔体在 1490—1610 °C 温区内  $\eta_{\text{eff}}$  的异常变化。

在 1610—1690 °C 温度范围内,熔硅有效黏度  $\eta_{\text{eff}}$  随磁场强度  $B$  值的增加而增大,二者同样呈抛物线关系。但由于此时硅熔体原子已经全部处于“无序”状态,内摩擦力随温度升高而下降,抛物线顶端数值在低温处要比高温处高,温度的影响减弱,见图 7。

## 5. 结 论

本文研究了磁场下硅熔体的有效黏度,得到如下结论:

1) 向熔硅所在空间引入磁场,测得熔硅有效黏度随磁场强度  $B$  值增加而增大,二者呈抛物线关系。温度愈高,磁场的影响越大。

2) 在 1490—1610 °C 之间,当磁场一定,在不同温度测得的  $\eta_{\text{eff}}$  有异常变化。其有效黏度出现一个峰值,这是硅熔体结构在此阶段发生变化,造成  $\sigma$  和  $f$

在不同阶段分别起主导作用的结果. 该温区的几条抛物线几乎重叠, 测得的有效黏度值接近不变.

3) 在 1610—1690 °C 之间, 熔硅已完成结构的变化, 熔硅原子全部处于“无序”状态,  $\eta_{\text{eff}}$  与  $B$  变化仍呈抛物线关系, 只是随着温度升高, 温度的影响

减弱.

4) 当磁感应强度为 0.068 T 时, 熔体磁黏滞系数  $\eta_{\text{eff}}$  比无磁场时的黏滞系数  $\eta_0$  增加 2—3 个数量级, 证实了大直径硅单晶生长时, 引入磁场抑制大体积熔硅热对流是有效的.

- [ 1 ] Song D Y 2000 *Shanghai Nonferrous Materials* **21** 28 ( in Chinese )  
[ 宋大有 2000 上海有色金属 **21** 28 ]
- [ 2 ] Xue Y S , Liu C C , Wang H Y , Sun W Z , Zhang W 2003 *Microelectronic Engineering* **66** 542
- [ 3 ] Xue Y S , Liu C C , Wang H Y , Hao Q Y 2003 *J Crystal Growth* **254** 298
- [ 4 ] Munakata T , Somega S , Tanasawa I 2004 *International Journal of Heat and Mass Transfer* **47** 4525
- [ 5 ] Xue Y S , Liu C C , Wang H Y , Zhang W L , Yang Q X , Li Y X , Ren B Y , Liu F G 2004 *Science in China Ser E* **47** 281
- [ 6 ] Yu H P , Sui Y K , Zhang F Y , Chang X A , An G P 2005 *Wuji Cailiao Xuebao/ Journal of Inorganic Materials* **20** 453 ( in Chinese )

- [ 宇慧平、隋允康、张峰翊、常新安、安国平 2005 无机材料学报 **20** 453 ]
- [ 7 ] Sato Y , Nagasawa T , Sakamoto T , Moriguchi S , Yamamura T , Waseda Y 2003 *J Crystal Growth* **249** 404
- [ 8 ] Nishimura S , Matsumoto S , Terashima K 2002 *J Crystal Growth* **237-239** 1667
- [ 9 ] Kang J Y , Tozawa Shinro 1996 *Acta Phys. Sin.* **45** 324 ( in Chinese ) [ 康俊勇、户译慎一郎 1996 物理学报 **45** 324 ]
- [ 10 ] Sasaki H , Anzai Y , Huang X M , Terashima K , Kimura S 1995 *Jpn. J. Appl. Phys.* **34** 414
- [ 11 ] Halbach K 1980 *Nuclear Instruments and Methods* **169** 1

## The effective viscosity of silicon melt in magnetic field<sup>\*</sup>

Zhang Wen Liu Cai-Chi Wang Hai-Yun Xu Yue-Sheng<sup>†</sup> Shi Yi-Qing

( Institute of Information Function Materials , Hebei University of Technology , Tianjin 300130 , China )

( Received 27 March 2007 ; revised manuscript received 16 November 2007 )

### Abstract

A magnetic field generated by a magic ring was applied to the space containing the silicon melt , and the effective viscosities of silicon melt were measured by the method of rotary vibration. The magic ring was constructed by permanent magnets made of NdFeB permanent-magnet material. The results showed that , at certain temperature , the effective viscosity increased with the increase of magnetic field intensity , and they are parabolically related. The magnet field had stronger effect when the silicon melt temperature increased , which was indicated by a more warped up parabola. In the range of 1490 to 1610 °C , the viscosity had an extraordinary fluctuation which indicated a structure change in the silicon-melt. The value of silicon melt viscosity increased by 2—3 orders of magnitude when the magnetic field reached 0.068 T. The results indicated that applying a magnetic field to the silicon melt space is an effective way to suppress thermal convection during the growth of large diameter single crystal silicon.

**Keywords :** silicon melt , effective viscosity , magic-ring permanent magnets , method of rotary vibration

**PACC :** 8110F , 6520 , 6620 , 6810C

<sup>\*</sup> Project supported by the Nature Science Foundation of Hebei Province , China ( No. 503054 ) , the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 50372016 ) , the Doctor Startup Foundation of the Hebei University of Technology and the Foundation for Key Program of Ministry of Education , China ( Grant No. 205017 ) .

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail : yueshengxu@you. com zhangwen@hebut. edu. cn