

晶体旋转影响下的溶液法 6 英寸 SiC 单晶生长研究

杨焱 李早阳[†] 高俊浩 祁冲冲 李登攀 武光辉 刘立军

(西安交通大学能源与动力工程学院, 西安 710049)

(2025 年 5 月 6 日收到; 2025 年 5 月 27 日收到修改稿)

溶液法是生长低缺陷高品质碳化硅 (SiC) 单晶的重要方法, 针对 6 英寸溶液法生长 SiC 单晶系统, 建立了感应加热和热质传递全局数值分析模型, 考虑了洛伦兹力、离心力、热浮力以及表面张力对溶液流动的耦合作用, 研究了晶体旋转对溶液中速度场、温度场、碳浓度场、晶体生长速率以及坩埚壁面碳溶解析出的影响规律. 结果表明, 溶液中洛伦兹力的存在使得低晶体转速下的流场十分复杂, 晶体转速需要控制在合适的范围内, 使得生长界面下方由输运决定的碳浓度分布与生长界面处由温度决定的碳浓度分布相协调, 才能获得均匀且高的 SiC 单晶生长速率. 晶体转速过小使得 SiC 单晶生长速率很低, 过大导致生长速率径向均匀性下降, 转速为 25 r/min 时 SiC 单晶的平均生长速率较高且沿径向分布均匀性较好. 进一步分析了溶液-坩埚交界面碳组分的溶解和析出, 定位了坩埚壁面溶解较快区域和 SiC 多晶颗粒生成区域, 并结合速度场预测了多晶颗粒的去向. 研究结果为溶液法生长 6 英寸 SiC 单晶提供了科学依据.

关键词: 溶液法, SiC 单晶, 晶体旋转, 数值模拟**PACS:** 81.10.Dn, 81.05.Ea, 44.27.+g**DOI:** 10.7498/aps.74.20250595**CSTR:** 32037.14.aps.74.20250595

1 引言

碳化硅 (SiC) 作为第三代半导体材料, 具有带隙宽、热导率高和化学稳定性强等优点, 应用前景十分广泛^[1-3]. 当前大规模制备 SiC 单晶的主要方法为物理气相传输法 (physical vapor transport, PVT), 使用此方法生长的 8 英寸晶体已经实现商业化^[4]. 然而, 气相法生长出的晶体缺陷密度较大, 且扩径与 P 型掺杂困难^[5]. 为了克服这些难题, 研究者们尝试通过顶部籽晶溶液法 (top-seeded solution growth, TSSG) 生长出了质量更高的 SiC 单晶^[6]. 溶液法已被证明是生长高品质 SiC 单晶的有效方法, 具有位错密度低、易扩径和易 P 型掺杂等优势, 该方法有望成为未来生产 SiC 单晶的主要方法^[7,8].

通过溶液法生长 SiC 单晶也面临一些挑战, 例

如 SiC 单晶生长速率较慢^[9]、长期保持生长系统中碳溶解、输运与消耗平衡相对困难^[10]等. 在溶液中建立合适的温度场和速度场可以控制碳从石墨坩埚向 SiC 生长界面的输送^[8,11], 从而提高 SiC 单晶的生长速率并维持碳组分平衡^[10,12]. 为此, 研究者在热场设计^[13-16]、坩埚形状^[13,17-19]、晶体旋转^[9,20-22]、磁场调控^[23-29]等方面开展了相关研究. 在上述手段中, 晶体旋转可以有效地控制溶液的流动形态和碳输运过程, 增大生长界面处碳浓度梯度, 提升 SiC 单晶的生长速率^[9,20,21]. Fujii 等^[22]和 Umezaki 等^[9,12]分别研究了晶体转速对表面形态和生长速率的影响, 发现随着转速增加晶体表面越平坦且生长速率越高, 当晶体转速大于某一数值时, 平均生长速率几乎不再增加. 上述研究中感应加热频率均大于 30 kHz 或未考虑感应加热生成的磁场. 频率较高时, 感应加热磁场在溶液中产生的洛伦兹力

[†] 通信作者. E-mail: lizaoyang@mail.xjtu.edu.cn

很小,对溶液流动影响微弱,可以忽略,但此时保温毡等炉体外侧部件对其内部石墨部件的电磁屏蔽效应增强,更多的功率集中在保温毡上,导致整个生长系统加热效率较低.因此,需要选择频率 4 kHz 左右较低的感应加热电流参数以提高加热效率^[30],但较低的频率下溶液中感应产生的洛伦兹力较大,对溶液流动和晶体生长将产生未知的影响.另外,已有研究中晶体尺寸为 2 或 4 英寸,而生长 6 英寸晶体已经成为当前研究的重点,大尺寸下晶体生长炉内部的热量传递、溶液流动与组分分布规律更加复杂,使得相关研究迫在眉睫.

本文以溶液法生长 6 英寸 SiC 单晶为研究对象,建立能够计算感应加热与热质传递的全局数值分析模型,选择加热效率较高的 4 kHz 频率为基准^[30],获得感应加热时溶液中洛伦兹力的分布特征,研究晶体旋转与洛伦兹力共同影响下溶液中速度场、温度场和碳浓度场的分布规律,阐明影响 SiC 单晶生长速率分布和坩埚壁面碳溶解与析出的主要因素及作用机制,研究结果对于溶液法生长大尺寸 SiC 单晶具有重要指导意义.

2 模型描述

2.1 物理模型

图 1 所示为本研究使用的溶液法 6 英寸 SiC 单晶生长炉的结构示意图,主要由溶液、石墨坩埚、石墨发热体、碳纤维保温毡、铜线圈、SiC 晶体和石墨籽晶杆组成,各部件材料的物性参数见表 1.铜制感应加热线圈与水冷系统连接,炉内充满惰性气体, SiC 晶体直径为 150 mm (6 in, 1 in = 2.54 cm),

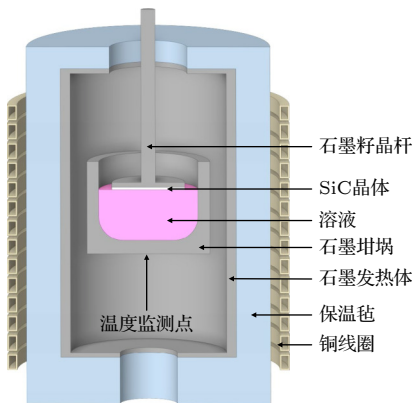


图 1 溶液法 SiC 单晶生长炉结构示意图

Fig. 1. Structural configuration of the TSSG furnace.

石墨坩埚的内径为 205 mm,坩埚底部设计为圆弧形,以利于改善溶液流动、消除局部旋涡.在晶体生长过程中,感应加热频率为 4 kHz,电流幅值为 700 A.采用该模型研究晶体旋转对 SiC 单晶生长的影响规律时,选取代表性转速分别为 0, 10, 25, 55, 100 与 150 r/min.

表 1 主要材料的物理特性^[13,16,18]

Table 1. Physical properties of the main materials^[13,16,18].

Materials	Parameters	Value	Units
Si	Density	2550	kg/m ³
	Viscosity	8×10^{-4}	Pa·s
	Electrical conductivity	1.2×10^6	S/m
	Thermal conductivity	65	W/(m·K)
	Specific heat	1000	J/(kg·K)
	Thermal expansion coefficient	0.00014	1/K
	Surface tension	-2.5×10^{-4}	N/m·K
	Surface emissivity	0.3	—
SiC	Density	3216	kg/m ³
	Electrical conductivity	1000	S/m
	Thermal conductivity	30	W/(m·K)
	Specific heat	1290	J/(kg·K)
	Surface emissivity	0.5	—
Graphite	Electrical conductivity	75400	S/m
	Thermal conductivity	$150 \times 300 / T$	W/(m·K)
	Surface emissivity	0.9	—
Carbon felt	Electrical conductivity	430	S/m
	Thermal conductivity	0.336	W/(m·K)
	Surface emissivity	0.8	—
Copper	Electrical conductivity	5.99×10^7	S/m
	Thermal conductivity	400	W/(m·K)
	Surface emissivity	0.5	—

2.2 感应加热与热质传递数学模型

通过求解麦克斯韦方程组来计算电磁场分布,从而获得各个部件上的感应加热功率与洛伦兹力分布.感应加热数学模型的主要假设如下: 1) SiC 单晶炉为二维轴对称结构,使用圆柱坐标系求解,磁感应强度 $\mathbf{B}$ 有两个分量,磁矢势 $\mathbf{A}$ 和电流密度 $\mathbf{J}$ 均仅有一个角分量 ($\mathbf{A}$ 和 $\mathbf{J}$); 2) 模型中无净电荷; 3) 所有介质都是线性、各向同性且静止的; 4) 忽略位移电流.采用复数形式求解感应加热模型的控制方程如下^[31]:

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}, \quad (1)$$

$$\nabla^2 A - \frac{A}{r^2} = \begin{cases} \sigma_{\text{co}} \mu_{\text{co}} (i\omega A + \nabla \phi), & \text{铜线圈,} \\ i\mu \sigma \omega A, & \text{其他导体, (2)} \\ 0, & \text{其余位置,} \end{cases}$$

$$I_t = \int_{\Omega} [-\sigma_{\text{co}} (i\omega A + \nabla \phi)] d\Omega, \quad (3)$$

其中 (r, z) 为圆周坐标; μ_{co} 为铜的磁导率; μ 为其他部件的磁导率 ($\mu = \mu_r \mu_0$), μ_r 为相对磁导率 (求解时取 $\mu_r = 1$), μ_0 为真空磁导率; σ_{co} 为铜的电导率; ω 为角频率 ($\omega = 2\pi f$, f 为感应加热频率); σ 为其他部件的电导率; ϕ 为标量电位; I_t 为线圈中的激励电流, 本文中取值 700 A 使得坩埚底部温度达到 2073 K; Ω 为线圈横截面积. 求解时考虑了感应线圈中的自感效应, 将其视为涡流密度: $-i\sigma_{\text{co}} \omega A$ [32], 从而精确求解 SiC 单晶炉中线圈的功率分布.

对称轴和无穷远处的边界条件为

$$A = 0 \text{ at } r = 0 \text{ 和 } (r, z) \rightarrow \infty. \quad (4)$$

求解控制方程后, 得出 SiC 单晶炉中电流密度 J 和感应功率密度 S_Q 为

$$J = \begin{cases} J_e + J_s = -\sigma_{\text{co}} (i\omega A + \nabla \phi), & \text{铜线圈,} \\ J_e = -i\sigma \omega A, & \text{其他导体, (5)} \end{cases}$$

$$S_Q = \frac{J \cdot J^*}{2\sigma}, \quad (6)$$

其中 J 为电流密度, J_e 为源电流密度, J_s 为涡电流密度, J^* 为电流密度的复共轭.

在感应加热 4 kHz 的低频条件下, 必须考虑溶液中产生的洛伦兹力对流动的影响, 时均洛伦兹力密度 F_E 为

$$F_E = \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi} (J \times B^*) dt = \frac{1}{2} \text{Re}(J \times B^*), \quad (7)$$

其中 B^* 为磁感应强度的复共轭.

热质传递数学模型的主要假设如下: 1) SiC 单晶炉中所有辐射表面为灰体及漫反射表面; 2) 溶液视为不可压缩流体, 使用 Boussinesq 近似; 3) 惰性气体视为理想气体. 感应加热线圈内部布置水冷系统, 设置其内壁面温度为 303 K. 根据上述假设, 溶液区域的控制方程为

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \nabla \cdot (\rho \mathbf{u} \mathbf{u}) = & -\nabla p + \nabla \cdot [\eta (\nabla \mathbf{u} + \nabla \mathbf{u}^T)] \\ & - \rho g \beta_T (T - T_{\text{ref}}) + F_E, \end{aligned} \quad (9)$$

$$\nabla \cdot (\rho C_p \mathbf{u} T) = \nabla \cdot (\lambda \nabla T) + S_Q, \quad (10)$$

$$\nabla \cdot (\rho \mathbf{u} C) = D \nabla^2 C, \quad (11)$$

其中 $\mathbf{u}$ 为速度, ρ 为密度, η 为动力黏度, $\mathbf{g}$ 为重力加速度矢量, β_T 为热膨胀系数, T 为温度, T_{ref} 为参考温度, C_p 为比热容, λ 为热导率, S_Q 为热源 (感应功率密度), C 为碳的摩尔浓度, D 为扩散系数 (求解时取 $D = 1.7 \times 10^{-8}$ [33]).

在溶液的自由表面, 速度边界条件考虑表面张力引起的 Marangoni 对流, 碳的法向通量为 0. 溶液-坩埚交界面和溶液-晶体交界面 (生长界面) 的碳浓度边界条件如下 [34]:

$$C_{\text{eq}} = \frac{\rho_{\text{Si}}}{M_{\text{Si}}} \frac{x_{C_{\text{eq}}}}{1 - x_{C_{\text{eq}}}}, \quad (12)$$

$$x_{C_{\text{eq}}} = \exp \left(6.249 - \frac{24460}{T} \right), \quad (13)$$

其中 C_{eq} 为碳的平衡浓度, ρ_{Si} 为硅溶液的密度, M_{Si} 为硅的摩尔质量, $x_{C_{\text{eq}}}$ 为碳的摩尔分数.

生长速率由垂直于晶体表面的碳通量计算 [33]:

$$V_g = \frac{M_{\text{SiC}}}{\rho_{\text{SiC}}} (-D \nabla C) \cdot \mathbf{n}, \quad (14)$$

其中 M_{SiC} 为 SiC 的摩尔质量, ρ_{SiC} 为 SiC 的密度, $\mathbf{n}$ 为垂直于晶体表面的单位向量.

此外取溶液-坩埚表面的碳浓度梯度 $-\nabla C_{\text{crucible}}$, $-\nabla C_{\text{crucible}} < 0$ 表示坩埚溶解, $-\nabla C_{\text{crucible}} > 0$ 表示此处有可能析出 SiC 多晶颗粒. 溶液中碳的过饱和度和 S 定义如下 [20]:

$$S = \frac{C - C_{\text{eq}}}{C_{\text{eq}}}, \quad (15)$$

其中 $S > 0$ 表示碳过饱和, $S < 0$ 表示碳未饱和.

为评估 SiC 单晶在整个生长界面的生长状态, 本文定义了晶体中心到边缘的平均生长速率 v_{avg} 和生长速率标准差 σ_v :

$$v_{\text{avg}} = \frac{\sum_{i=1}^n (v_i \times s_i)}{\sum_{i=1}^n s_i}, \quad (16)$$

$$\sigma_v = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n [(v_i - v_{\text{avg}})^2 \times s_i]}{\sum_{i=1}^n s_i}}, \quad (17)$$

其中 v_i 为生长界面不同位置计算网格中心的晶体生长速率, s_i 为生长界面每个网格在圆柱坐标系下的面积, n 为整个生长界面的网格总数.

3 结果和讨论

3.1 感应加热功率与洛伦兹力分布

溶液法生长 SiC 单晶过程中, 电磁感应炉体各导电部件内产生加热功率和洛伦兹力, 进而影响晶体生长. 图 2(a) 所示为 SiC 单晶炉的功率密度和温度分布图. 从左侧功率密度分布可以看出, 石墨发热体上感应生成的功率密度很大, 保温毡、石墨坩埚和溶液内部的感应功率密度均较小. 其中, 保温毡的电导率较小导致其内部感应的功率密度偏小, 这对于减小保温毡自发热与热损失、提高其使用寿命是有利的; 石墨坩埚和溶液内的感应功率密度较小, 则是由于该频率电流参数下石墨发热体和保温毡对其内部导电部件的电磁屏蔽作用. 图 2(b) 所示为 SiC 单晶炉各个部件上的感应功率分布. 可以看出感应加热总功率为 35.39 kW, 其中石墨发

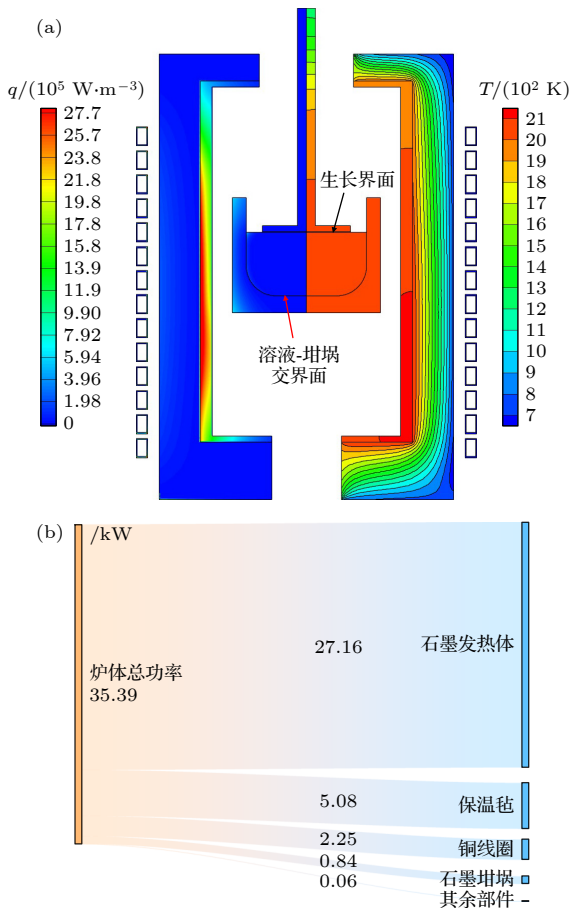


图 2 SiC 单晶炉的功率和温度分布 (a) 功率密度和温度分布; (b) 功率分配

Fig. 2. Power and temperature distribution in the TSSG furnace (4 kHz, 700 A): (a) Power density and temperature distribution; (b) power distribution.

热体上感应产生的功率为 27.16 kW, 占总功率的 76.74%; 保温毡上虽功率密度较小 (图 2(a) 左侧), 但较大的体积使其内部总功率达到 5.08 kW, 属于第二发热部件. 从图 2(a) 右侧温度分布可以看出 SiC 单晶炉内部最高温度位于石墨发热体上, 保温毡内部等温线分布密集、温差较大, 且其内部所包裹的部件温度均相对较高, 证明保温毡具有良好的隔热性能.

采用感应加热为晶体生长提供功率时, 同时也会在导电部件上产生洛伦兹力. 固体部件 (如石墨坩埚、石墨发热体和保温毡) 上的洛伦兹力对晶体生长没有影响, 但溶液中的洛伦兹力则会改变溶液流动, 从而影响温度与碳组分分布以及 SiC 单晶生长过程. 图 3 左侧所示为 4 kHz, 700 A 感应电流时溶液中的洛伦兹力大小分布, 由于集肤效应洛伦兹力主要集中在坩埚侧壁面附近, 最大洛伦兹力密度超过 2000 N/m³. 从图 3 右侧可以发现力的方向总体由坩埚-溶液界面、自由表面和生长界面指向溶液中心.

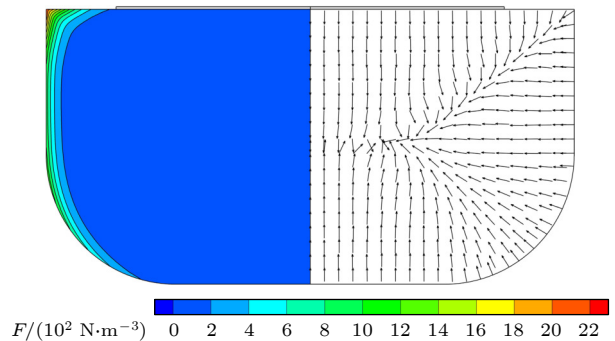


图 3 溶液中洛伦兹力的大小与方向分布 (4 kHz, 700 A). 图中左侧云图表示力的大小; 右侧箭头仅表示力的方向, 与大小无关

Fig. 3. Lorentz force distribution in the solution (4 kHz, 700 A). The left side indicates the magnitude of the force. The right arrow indicates only the direction of the force, independent of the magnitude.

3.2 溶液中速度场和温度场分布

在电磁感应加热作用下, 溶液中的流动会受到洛伦兹力、热浮力、表面张力、晶体旋转离心力的共同影响^[23]. 为了研究低感应频率下洛伦兹力的影响效果, 对比计算了不同晶体转速下不考虑洛伦兹力和考虑洛伦兹力时的温度场与速度场. 图 4 所示为仅考虑晶体旋转、不考虑洛伦兹力时的情况. 可以发现当晶体转速为 0 和 10 r/min 时, 热浮力

主导下溶液沿坩埚侧壁面由下向上流动,进而在晶体下方由边缘流向中心,表面张力只作用于溶液的自由表面,其影响区域有限.对比图 4(a) 和图 4(b) 右侧速度云图可以发现,相比于 0 r/min 的情况,10 r/min 时溶液区域的流速减小,这是因为晶体旋转产生的离心力减弱了由热浮力主导的流动.晶体转速达到 25 r/min 及以上时 (图 4(c)–(f)) 整个溶液中的流动反向,此时沿坩埚侧壁面向下的旋涡主导溶液流动且在晶体下方建立了向上的流动,说明离心力的作用已超过热浮力.从图 4 左侧温度分布可以看出,随着晶体转速的增加,溶液中的高温区域由坩埚侧下部逐渐向底部移动,且最高温度逐渐增加并趋于稳定,当晶体转速超过 25 r/min 时,溶液底部的高温区域随转速增加而逐渐缩小.

图 5 所示为真实情况下考虑洛伦兹力、不同晶体转速时溶液区域的温度场和速度场分布.当晶体转速为 0 r/min 时 (图 5(a)),洛伦兹力、热浮力与表面张力共同作用,使得整个溶液区域形成一个沿坩埚侧壁向上流动的旋涡,相比图 4(a) 中的流动方向一致,但坩埚与溶液自由表面交界处的局部涡消失.当晶体转速为 10, 25 和 55 r/min 时 (图 5(b)–(d)),洛伦兹力的存在使得溶液流动结构相比图 4 中对应的转速更加复杂,存在局部的旋涡,如 10 r/min 时的对称轴附近、25 r/min 时的坩埚底部和侧壁面附近、55 r/min 的坩埚侧壁面附近.

从流动方向来看,晶体转速为 10 r/min 时,溶液主体仍沿坩埚侧壁面向上流动,晶体转速为 25 和 55 r/min 时,溶液主体则沿坩埚侧壁面向下流动,至晶体下方后整体向上流动,进而由晶体中心流向边缘,这与图 4 中对应转速下的主体流动方向是一致的.当晶体高速旋转时 (图 5(e), (f)),坩埚内的溶液流动完全由晶体旋转离心力主导,只存在一个沿坩埚壁面向下的旋涡,与图 4 中相同转速下的流动结构一致.对于温度分布而言,随着晶体转速的增加,坩埚壁面的高温区由侧下部向底部移动,这与图 4 中的情况是一致的.通过上述分析不难发现,洛伦兹力的存在不会改变热浮力、晶体旋转离心力与表面张力作用下溶液的整体流动方向,如图 5 中不同晶体转速下溶液的整体流动方向与图 4 中是一致的,但在中低晶体转速下离心力作用不够强时,会使得流动结构更加复杂 (图 5(b)–(d)),这对于碳组分的输运与分布影响是显著的.进一步对比生长界面附近速度场局部放大图可以发现,随晶体转速的增加界面下方流动方向与结构是变化的,特别是在中低转速下离心力没有完全主导溶液流动时变化更加明显 (图 5(a)–(c)). 0 r/min 时界面下方的溶液由晶体边缘流向中心,10 r/min 时此处溶液流动由多个旋涡控制,转速达到 25 r/min 时此处溶液由晶体中心流向边缘,界面处不同的溶液流动状态会影响碳组分在此处的析出特性.

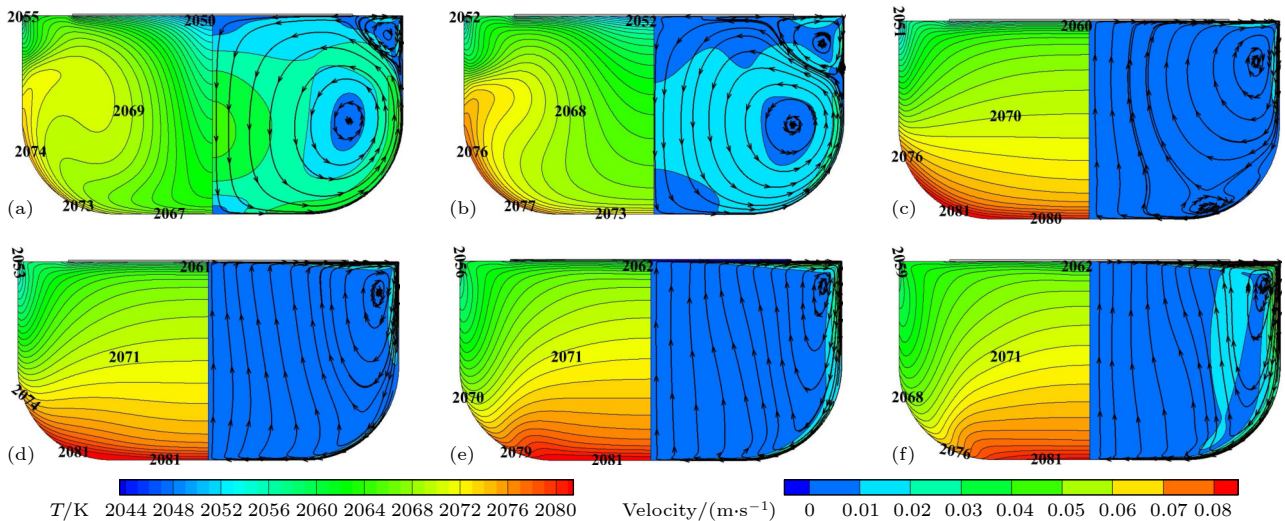


图 4 不考虑洛伦兹力时不同晶体转速下溶液中的温度场 (左侧) 和速度场 (右侧) (a) 0 r/min; (b) 10 r/min; (c) 25 r/min; (d) 55 r/min; (e) 100 r/min; (f) 150 r/min

Fig. 4. Temperature (left: $\Delta T = 1$ K) and velocity fields (right: $\Delta u = 0.01$ m/s) in the solution at different crystal rotation rates without considering Lorentz force: (a) 0 r/min; (b) 10 r/min; (c) 25 r/min; (d) 55 r/min; (e) 100 r/min; (f) 150 r/min.

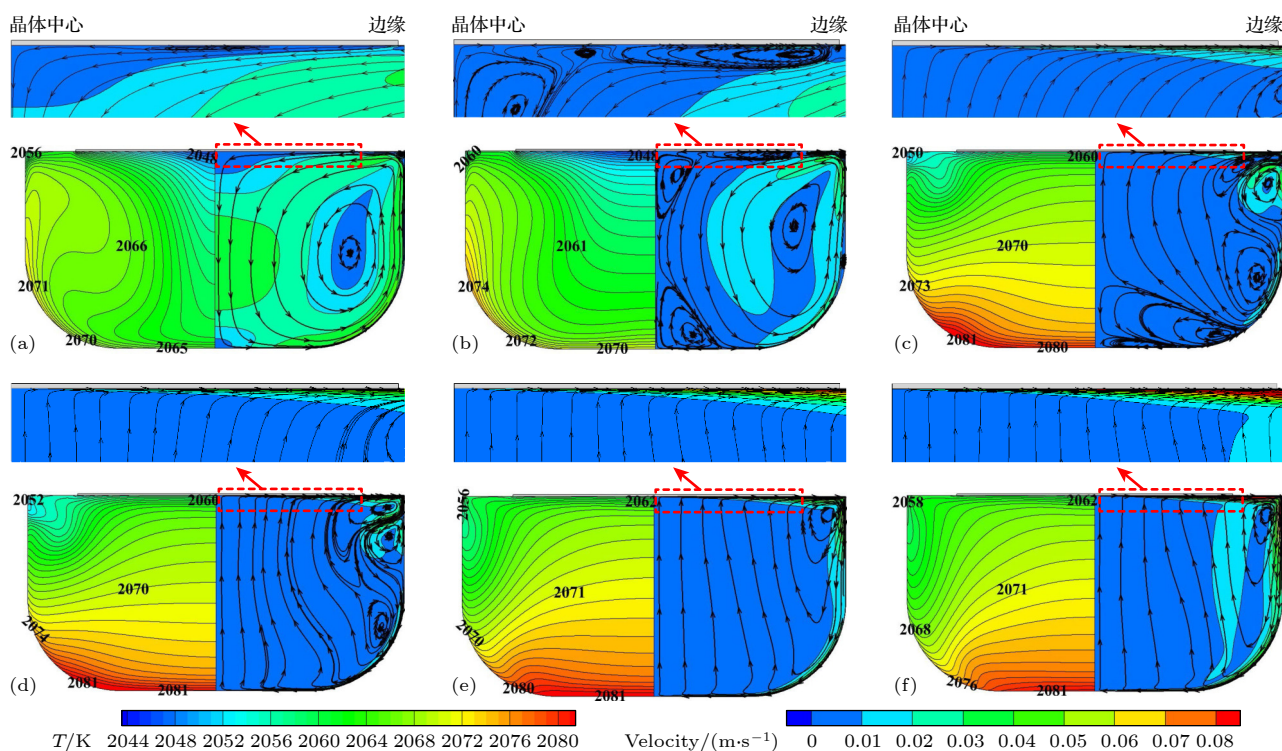


图5 考虑洛伦兹力时不同晶体转速下溶液中的温度场(左侧)和速度场(右侧) (a) 0 r/min; (b) 10 r/min; (c) 25 r/min; (d) 55 r/min; (e) 100 r/min; (f) 150 r/min

Fig. 5. Temperature (left: $\Delta T = 1$ K) and velocity fields (right: $\Delta u = 0.01$ m/s) in the solution at different crystal rotation rates considering Lorentz force: (a) 0 r/min; (b) 10 r/min; (c) 25 r/min; (d) 55 r/min; (e) 100 r/min; (f) 150 r/min.

3.3 溶液中碳浓度场分布

在高温条件下, 石墨坩埚内表面的碳溶解到溶液中, 进而通过对流和扩散输送至晶体表面. 图6所示为真实条件下考虑洛伦兹力时不同晶体转速下溶液区域的碳浓度与过饱和度分布. 图6左侧为碳浓度分布, 晶体转速为0和10 r/min时(图6(a)和图6(b)), 晶体下方向下的流动不利于将碳输运到生长界面中心附近并导致此处碳浓度较低. 晶体转速为25 r/min时(图6(c)), 坩埚底部的局部旋涡使得该区域碳浓度很高, 晶体下方向上的流动使得生长界面中心区域碳浓度有所升高. 当转速从55 r/min增加至150 r/min(图6(d)—(f))时, 较高的晶体转速驱动较强的沿坩埚壁面向下并从晶体下方向上的流动, 促进了碳从坩埚壁向溶液中心区域的输运, 使得中心轴附近的碳浓度明显增加. 从图6的右侧可以观察到晶体旋转对溶液中碳的过饱和度有显著影响, 图中实线代表过饱和度大于0, 虚线代表过饱和度小于0. 晶体转速从0 r/min增加至25 r/min(图6(a)—(c))时, 溶液中碳过饱和度较高的区域逐渐缩小, 有利于避免出现自发成核, 且在25 r/min时晶体下方碳的过饱和度

分布比较均匀. 当晶体转速从55 r/min增加至150 r/min(图6(d)—(f))时, 溶液上部靠近石墨坩埚壁面处的过饱和区域有所增大, 晶体中心处下方碳的过饱和度过高. 结合图5左侧温度与图6右侧过饱和度可知, 不同晶体转速下晶体表面与坩埚侧壁上部附近的溶液温度均较低、碳的过饱和度较高, 为SiC晶体析出创造了条件; 坩埚底部与圆弧处温度较高, 碳的过饱和度相对较低, 使得此处石墨坩埚溶解充当碳源.

本研究中SiC单晶半径为75 mm, 在晶体生长界面中心0 mm附近、径向中心37.5 mm附近以及径向边缘75 mm附近, 进一步分析典型晶体转速(10, 25, 100 r/min)对生长界面附近碳浓度分布的影响, 如图7所示. 由图7可以发现, 晶体转速为10 r/min时(图7(a)), 生长界面中心处碳浓度较低, 最小值为302 mol/m³, 稀疏的等值线意味着此处碳浓度梯度较小, 边缘处碳浓度较高, 最大值为336 mol/m³, 细密的等值线意味着此处碳浓度梯度较大, 最大最小值相差34 mol/m³左右. 这种分布趋势可以参考图5(b)进行分析, 该转速下溶液内部的主体流动沿坩埚侧壁面向上, 并在晶

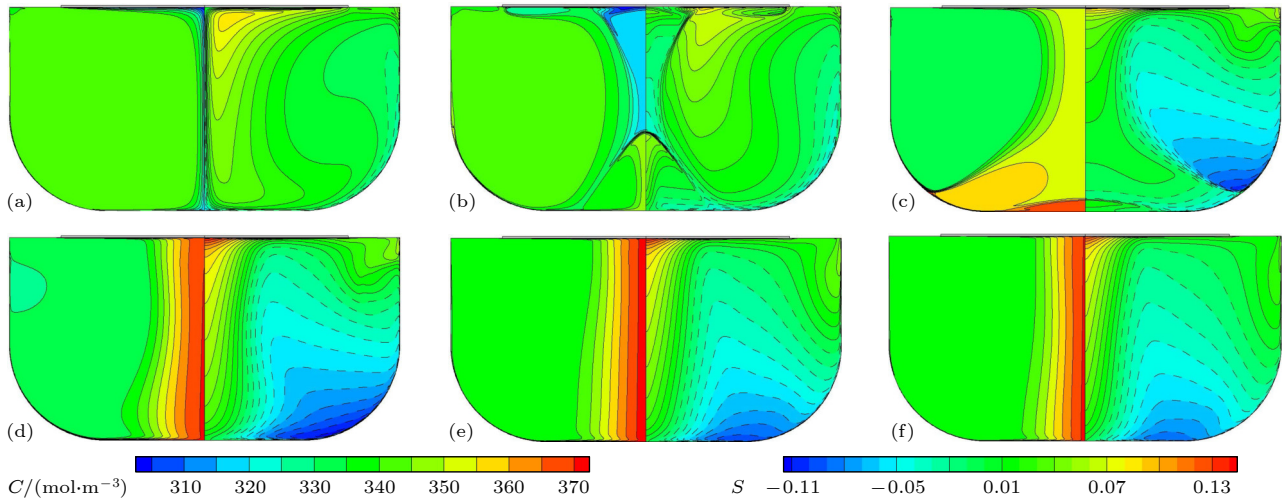


图6 不同晶体转速下溶液中的碳浓度(左侧)与过饱和度(右侧)分布 (a) 0 r/min; (b) 10 r/min; (c) 25 r/min; (d) 55 r/min; (e) 100 r/min; (f) 150 r/min

Fig. 6. Distribution of carbon concentration (left: $\Delta C = 5 \text{ mol/m}^3$) and supersaturation (right: $\Delta S = 0.001$) in the solution at different crystal rotation rates: (a) 0 r/min; (b) 10 r/min; (c) 25 r/min; (d) 55 r/min; (e) 100 r/min; (f) 150 r/min.

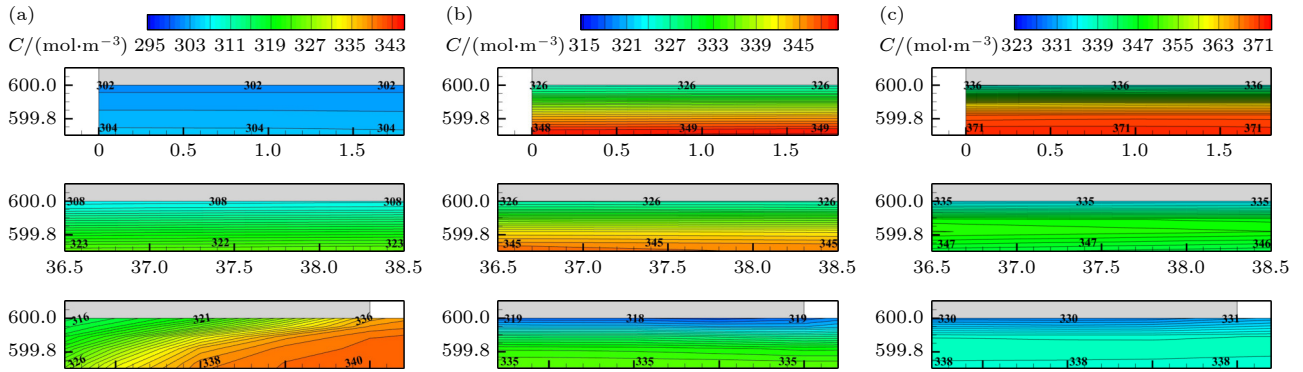


图7 生长界面附近碳浓度局部分布 (a) 10 r/min; (b) 25 r/min; (c) 100 r/min

Fig. 7. Local distribution of carbon concentration at the growth interface ($\Delta C = 1 \text{ mol/m}^3$): (a) 10 r/min; (b) 25 r/min; (c) 100 r/min.

体下方由边缘流向中心,大量碳由坩埚运输到晶体边缘处,在向生长界面中心运输的过程中逐渐减小.转速为25 r/min时(图7(b)),生长界面附近不同位置处的碳浓度等值线稀疏程度类似;由图5(c)可知该转速下溶液主体沿坩埚侧壁面向下流动,至晶体下方后整体向上流动,进而由晶体中心流向边缘,大量碳首先输运到晶体中心附近,最终使生长界面附近溶液中碳浓度从中心的326 mol/m³逐渐降低到边缘的318 mol/m³,相差约8 mol/m³.100 r/min时(图7(c)),过大的晶体转速使生长界面中心处碳浓度等值线更加密集、边缘处碳浓度等值线明显比中心处稀疏,此时生长界面附近溶液中碳浓度从336 mol/m³逐渐降低到330 mol/m³,降低了6 mol/m³左右.因此,晶体旋转可使生长界面附近的碳浓度分布发生显著变化,

径向浓度差异随转速增加混合增强而减小,晶体下方不同部位碳浓度等值线密度在25 r/min时相对均匀一致.

3.4 SiC 单晶生长速率分析

溶液中的碳浓度场影响着SiC单晶的生长速率,图8(a)所示为生长速率沿生长界面的径向分布,根据(14)式由界面处的碳浓度梯度计算而来,可以发现晶体转速对SiC单晶的生长速率径向分布影响十分显著.当晶体转速为0和10 r/min时,生长速率很低且径向分布不均匀.0 r/min时,大量碳由坩埚运输到晶体边缘处,少量的碳输运到晶体中心,导致晶体边缘生长速率较高,晶体中心附近生长速率很低.10 r/min时,结合图5(b)可知此时生长界面附近存在多个旋涡,该流动模式不利于

将碳运输到生长界面, 无法获得径向分布均匀的生长速率. 25 r/min 时, 生长速率显著提高且径向分布均匀, 说明此时生长界面处碳的浓度梯度比较高且分布均匀. 晶体转速进一步增加至 55 r/min 时, 生长速率有所提升但径向均匀性变差. 晶体转速从 55 r/min 增加到 150 r/min 时, 生长速率在中心处显著增加在边缘有所下降, 呈现从中心到边缘逐渐降低的分布规律, 这与图 7(c) 中生长界面边缘处碳浓度等值线明显比中心处稀疏的规律一致. 图 8(b) 为平均生长速率和生长速率标准差, 可以发现最优的晶体转速为 25 r/min, 此时平均生长速率较高 (95.8 $\mu\text{m}/\text{h}$) 且均匀性较好. 随着转速从 25 r/min 增加到 150 r/min 时, 平均生长速率先增加后趋于稳定, 生长速率标准差一直增加、均匀性越来越差.

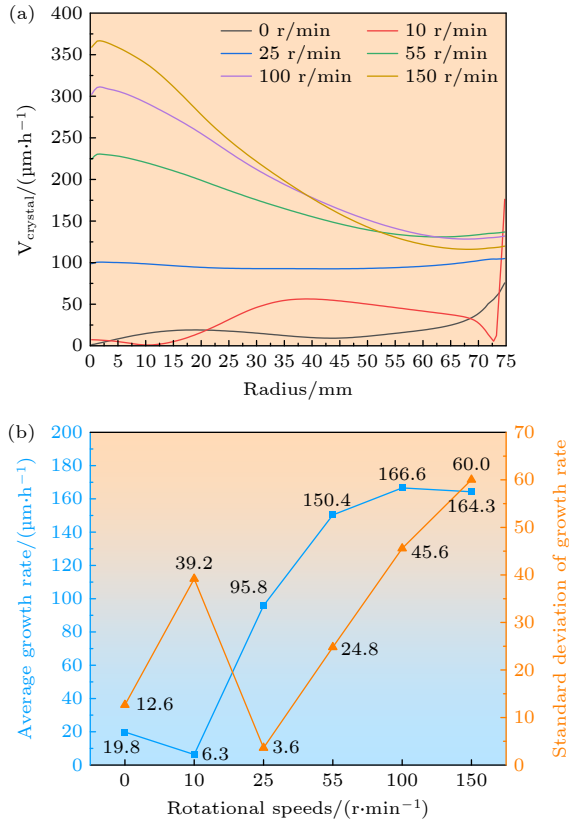


图 8 SiC 单晶生长速率 (a) 径向生长速率分布; (b) 平均生长速率和生长速率标准差

Fig. 8. SiC single-crystal growth rates at the growth interface: (a) Radial growth rate distribution; (b) average growth rate and standard deviation of growth rate.

为进一步深入分析影响 SiC 单晶生长速率的原因, 图 9 所示统计了三种典型晶体转速下生长界面附近温度分布和碳浓度分布. 图 9(a) 为生长界

面的径向温度分布, 10 r/min 时温度从中心到边缘逐渐升高, 结合图 5(b) 可以发现, 温度较高的溶液沿着坩埚壁面首先流动到生长界面边缘附近, 导致此处温度较高. 25 r/min 时, 溶液中主体流动反向 (图 5(c)), 坩埚底部温度较高的溶液流动到生长界面中心附近, 进而在晶体旋转的强制驱动下向晶体边缘流动, 生长界面径向温度均匀性有所改善. 100 r/min 时, 由于溶液区域流动更加剧烈, 生长界面的径向温度均匀性进一步改善.

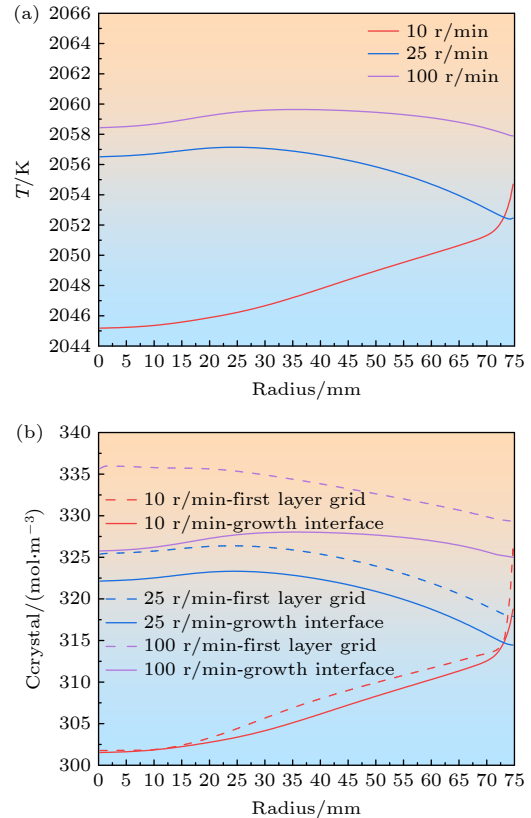


图 9 径向温度和碳浓度分布 (a) 生长界面径向温度分布; (b) 生长界面与相邻第一层网格处的径向碳浓度分布
Fig. 9. Radial temperature and carbon concentration distribution: (a) Radial temperature distribution along the growth interface; (b) radial carbon concentration distribution at the growth interface and the neighboring mesh.

生长速率由生长界面附近的碳浓度梯度决定, 选取生长界面与靠近生长界面的第一层计算网格上的碳浓度为依据进一步分析. 结合 (12) 式和 (13) 式可知, 生长界面的碳浓度由此处温度决定, 而第一层网格处的碳浓度分布由运输模式决定 ((11) 式). 最终要获得径向分布均匀且高的生长速率则需要生长界面 (晶体下方) 第一层网格处所建立的运输模式与生长界面温度分布相协调, 使得两

者的碳浓度沿着径向分布规律保持一致,且两者在同一位置处的差值较大.图 9(b) 为生长界面与相邻网格处的径向碳浓度分布. 10 r/min 时生长界面与第一层网格的碳浓度值在中心轴附近基本一致,两者差值几乎为 0; 在生长界面边缘处第一层网格的碳浓度急剧增加,两者的差值很大,此转速下生长界面与第一层网格碳浓度差值的径向分布规律区别较大. 25 r/min 时碳浓度分布从中心到边缘一直降低,生长界面与第一层网格的碳浓度径向分布规律基本保持一致,最终使得生长速率径向分布均匀. 100 r/min 时生长界面的温度均匀性进一步提升,使得碳浓度径向分布更加均匀,但此时速度场和温度场下建立的输运模式使得第一层网格处的碳浓度从中心到边缘逐渐下降,最终导致径向碳浓度梯度和生长速率从中心到边缘一直下降.在本结构中,生长界面附近由输运模式(扩散和对流)所获得的最优碳浓度从中心到边缘逐渐减小,因此为了得到径向分布均匀的生长速率,生长界面由温度控制的碳浓度分布应与其相协调,则此时界面径向温度从中心到边缘需大致呈下降趋势,但为了保证 SiC 单晶的品质径向温度梯度也不宜过大.

3.5 溶液-坩埚交界面碳组分溶解析出分析

石墨坩埚作为 SiC 单晶生长的碳源,分析获得溶液-坩埚交界面碳组分的溶解与析出特性至关重要.统计该界面碳浓度梯度 $-\nabla C_{\text{crucible}}$ 来分析溶解析出特性,当 $-\nabla C_{\text{crucible}} < 0$ 时表明此处坩埚溶解, $-\nabla C_{\text{crucible}} > 0$ 时表明此处坩埚壁面可能生成 SiC 多晶颗粒.图 10 统计了不同晶体转速下溶液-坩埚交界面处的碳浓度梯度分布,其中 X 轴是将溶液-坩埚交界面展开所得,将其分为 L_1 (溶液底部: 52.5 mm), L_2 (圆弧段), L_3 (溶液侧壁: 50 mm) 三段.晶体转速改变使得溶液-坩埚交界面碳浓度梯度有所区别.从 $-\nabla C_{\text{crucible}} < 0$ 的分布可以看出溶解区域均位于坩埚底部和侧下部圆弧处.结合图 5 可知, 0 r/min 时整个溶液-坩埚交界面附近为一个旋涡控制的流动,浓度梯度 $-\nabla C_{\text{crucible}}$ 分布比较平滑. 10 和 25 r/min 时交界面附近的流动由多个旋涡控制,部分位置处浓度梯度 $-\nabla C_{\text{crucible}}$ 出现突变,突变位置为两个旋涡交界处. 55 r/min 后,整个交界面附近的流动由一个旋涡控制,浓度梯度分布没有出现突变点.随着晶体转速的增加,石墨坩埚的溶解量明显增加,其中溶解最快的区域均位

于侧下部,此处圆弧形加厚设计保证了可长期作为碳源.此外晶体旋转后坩埚底部中心处的碳浓度梯度均基本为 0,根据图 5(b)–(f) 可知,整个坩埚底部温度较高为碳源,而靠近坩埚底部中心的溶液流动方向均为沿着坩埚壁面流向中心,该流动将大量的碳输运到坩埚底部中心附近,最终导致此处的碳浓度梯度很小.

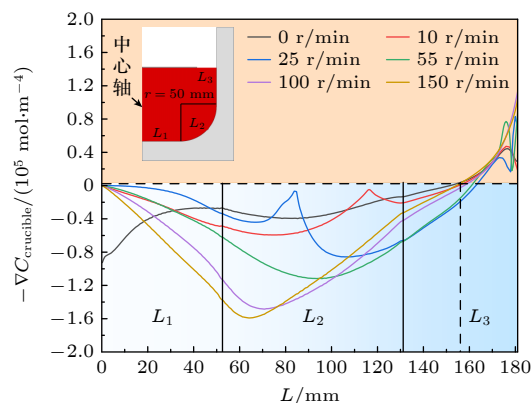


图 10 溶液-坩埚交界面的碳浓度梯度

Fig. 10. Carbon concentration gradient distribution at the solution-crucible interface.

不同晶体转速下 $-\nabla C_{\text{crucible}} > 0$ 的区域均位于坩埚侧壁上,说明该热场设计下此处极有可能生成 SiC 多晶颗粒.结合图 5 右侧速度场分析可知,此多晶颗粒的去向可能为:附着在石墨坩埚侧壁面或选择性沉降至坩埚底部;溶液流动将多晶带至生长界面,以包裹缺陷的形式进入 SiC 单晶.在设计 SiC 单晶炉热场以及工艺参数时应考虑 SiC 多晶颗粒的影响,尽可能将其沉降到坩埚底部从而提高 SiC 单晶的品质^[35].在本结构中,晶体旋转后整个溶液底部温度均较高(图 5),坩埚底部溶解作为碳源.结合图 6 右侧可知,当晶体旋转后坩埚底部溶液区域的过饱和度基本均小于 0,则沉淀到坩埚底部的 SiC 多晶颗粒理论上可再次溶解.此时若坩埚底部 SiC 多晶颗粒的溶解速率很慢而沉淀速率较快,可能会在坩埚底部与溶液之间形成 SiC 多晶颗粒夹层,坩埚底部的碳不能高效溶解到溶液中,影响生长界面 SiC 单晶的生长.因此,为保持生长界面 SiC 单晶长时间的稳定生长,应综合考虑 SiC 多晶生成与沉淀带来的影响,合理设计热场和各个工艺参数,例如通过热场设计使得溶液中靠近坩埚侧壁面处温度最高并作为碳源,沉淀到坩埚底部的多晶颗粒不会影响坩埚侧壁面碳的溶解.

4 结 论

本研究建立了包含感应加热与热质传递的溶液法 6 英寸 SiC 单晶生长系统数值模型, 研究了 4 kHz 感应加热条件下晶体转速对溶液中速度场、温度场、碳浓度场、SiC 单晶生长速率和坩埚-溶液交界面碳组分溶解析出的影响. 主要结论如下:

1) 获得了感应加热条件下 SiC 单晶炉内部的功率、温度及溶液中的洛伦兹力分布, 对比了不同晶体转速下溶液中不考虑和考虑洛伦兹力时的速度场和温度场, 发现洛伦兹力的存在不会改变溶液的整体流动方向, 但在低晶体转速下离心力较弱时会使溶液中流动结构更加复杂, 对于碳浓度分布的影响非常显著. 此外低晶体转速不利于将碳运输到生长界面中心附近并导致此处碳浓度较低, 较高的晶体转速促进了碳从坩埚壁面向溶液中心区域的运输.

2) 晶体旋转可以有效地提高生长速率并改善径向生长速率均匀性, 但转速应控制在合适的范围内, 使得生长界面下方 (晶体下方) 由运输模式决定的碳浓度分布与生长界面由温度决定的碳浓度分布相协调, 才能获得均匀且高的 SiC 单晶生长速率. 晶体转速过小导致 SiC 单晶生长速率很低, 过大会恶化生长速率的径向均匀性, 当晶体转速为 25 r/min 时, SiC 单晶的平均生长速率较高且沿径向分布均匀性较好.

3) 获得了溶液-坩埚交界面的碳浓度梯度分布, 明确了石墨坩埚内表面碳组分的溶解与析出特性, 发现石墨坩埚底部和侧下部是主要碳溶解区域, 随晶体转速增加石墨坩埚的溶解量增加, 坩埚侧下部圆弧形加厚设计保证了此处可长期作为碳源; 坩埚侧壁上部极有可能析出 SiC 多晶颗粒, 结合流场预测了多晶颗粒的去向并提出了改进方向.

参考文献

- [1] Matsunami H, Kimoto T 1997 *Mater. Sci. Eng. , R* **20** 125
- [2] Meyer C, Philip P 2005 *Cryst. Growth Des.* **5** 1145
- [3] Liu D J, Zhou F, Chen S Y, Hu Z L 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 157901 (in Chinese) [刘东静, 周福, 陈帅阳, 胡志亮 2023 物理学报 **72** 157901]
- [4] Yang N J, Song B, Wang W J, Li H 2022 *Crystengcomm* **24** 3475
- [5] Kimoto T 2016 *Prog. Cryst. Growth Charact. Mater.* **62** 329
- [6] Xiao S Y, Harada S, Murayama K, Ujihara T 2016 *Cryst.*

- Growth Des.* **16** 5136
- [7] Ujihara T, Maekawa R, Tanaka R, Sasaki K, Kuroda K, Takeda Y 2008 *J. Cryst. Growth* **310** 1438
- [8] Wang G B, Sheng D, Li H, et al. 2023 *Crystengcomm* **25** 560
- [9] Umezaki T, Koike D, Horio A, Harada S, Ujihara T 2014 *15th International Conference on Silicon Carbide and Related Materials (ICSCRM)* Miyazaki, Japan, September 29–October 4, 2014 p63
- [10] Dang Y F, Zhu C, Ikumi M, et al. 2021 *Crystengcomm* **23** 1982
- [11] Yamamoto T, Okano Y, Ujihara T, Dost S 2017 *J. Cryst. Growth* **470** 75
- [12] Umezaki T, Koike D, Harada S, Ujihara T 2016 *Jpn. J. Appl. Phys.* **55** 125601
- [13] Mercier F, Dedulle J M, Chaussende D, Pons M 2010 *J. Cryst. Growth* **312** 155
- [14] Ha M T, Shin Y J, Lee M H, Kim C J, Jeong S M 2018 *Phys. Status Solidi A* **215** 1701017
- [15] Kusunoki K, Kishida Y, Seki K 2019 *Mater. Sci. Forum (Switzerland)* **963** 85
- [16] Ha M T, Shin Y J, Bae S Y, Park S Y, Jeong S M 2019 *J. Korean Ceram. Soc.* **56** 589
- [17] Su Hun C, Young Gon K, Yun Ji S, et al. 2018 *Mater. Sci. Forum (Switzerland)* **924** 27
- [18] Liu B T, Yu Y, Tang X, Gao B 2020 *J. Cryst. Growth* **533** 125406
- [19] Yoon J Y, Lee M H, Kim Y, Seo W S, Shul Y G, Lee W J, Jeong S M 2017 *Jpn. J. Appl. Phys.* **56** 065501
- [20] Li F C, He L, Yan Z Y, Qi X F, Ma W C, Chen J L, Xu Y K, Hu Z G 2023 *J. Cryst. Growth* **607** 127112
- [21] Sui Z R, Xu L B, Cui C, Wang R, Pi X D, Yang D R, Han X F 2024 *Crystengcomm* **26** 1022
- [22] Fujii K, Takei K, Aoshima M, et al. 2015 *Mater. Sci. Forum (Switzerland)* **821–823** 35
- [23] Liu Y H, Li M Y, Yan Z Y, et al. 2024 *J. Cryst. Growth* **643** 127801
- [24] Mercier F, Nishizawa S 2011 *8th European Conference on Silicon Carbide and Related Materials* Oslo, Norway, August 29–September 2, 2011 p32
- [25] Ariyawong K, Dedulle J M, Chaussende D 2014 *15th International Conference on Silicon Carbide and Related Materials (ICSCRM)* Miyazaki, Japan, September 29–October 04, 2014 p71
- [26] Mercier F, Nishizawa S 2013 *J. Cryst. Growth* **362** 99
- [27] Wang L, Horiuchi T, Sekimoto A, Okano Y, Ujihara T, Dost S 2018 *J. Cryst. Growth* **498** 140
- [28] Ha M T, Lich L V, Shin Y J, Bae S Y, Lee M H, Jeong S M 2020 *Materials* **13** 651
- [29] Wang L, Takehara Y, Sekimoto A, Okano Y, Ujihara T, Dost S 2020 *Crystals* **10** 111
- [30] Li Z Y, Yang Y, Wang J L, Luo J P, Liu L J 2024 *Proceedings of the 11th International Workshop on Modeling in Crystal Growth*, ROMANIA, September 22–25, 2024 p573198
- [31] Weiss J, Csendes Z J 1982 *IEEE Transactions on Power Apparatus and Systems* **101** 3796
- [32] Tavakoli M H 2008 *Cryst. Growth Des.* **8** 483
- [33] Lefebure J, Dedulle J M, Ouisse T, Chaussende D 2012 *Cryst. Growth Des.* **12** 909
- [34] Liu B T, Yu Y, Tang X, Gao B 2019 *J. Cryst. Growth* **527** 125248
- [35] Hayashi Y, Mitani T, Komatsu N, Kato T, Okumura H 2019 *J. Cryst. Growth* **523** 125151

Effects of crystal rotation on 6-inch SiC crystal growth by top-seeded solution growth method

YANG Yao LI Zaoyang[†] GAO Junhao QI Chongchong
LI Dengnian WU Guanghui LIU Lijun

(School of Energy and Power Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

(Received 6 May 2025; revised manuscript received 27 May 2025)

Abstract

The top-seeded solution growth (TSSG) method is a critical technique for growing low-defect and high-quality silicon carbide (SiC) single crystals. A comprehensive numerical analysis model including induction heating, heat and mass transfer is developed for growing 6-inch SiC single crystals. The coupling effects of Lorentz force, centrifugal force, thermal buoyancy force and surface tension on the solution flow are considered, and the effects of crystal rotation speed on the velocity field, temperature field, carbon concentration field, crystal growth rate and carbon dissolution and precipitation on the crucible wall are systematically investigated. The results indicate that the Lorentz force in the solution results in a more complex flow field at low crystal rotation speeds. The crystal rotation speed should be controlled within the appropriate range to ensure that the carbon concentration distribution beneath the growth interface determined by the transport mode is coordinated with that at the growth interface determined by the temperature, which is beneficial for the uniform and high growth rate of SiC single crystals. Low rotation speeds reduce the growth rate of SiC single crystals, while high rotation speeds lead radial uniformity of growth rate to decrease. At a rotation speed of 25 r/min, the average growth rate of SiC single crystals is higher and the radial distribution uniformity is better. Further analysis is conducted on the dissolution and precipitation of carbon at the solution-crucible interface, and the regions, where the crucible wall dissolves quickly and SiC polycrystalline particles are generated, are located. The transport directions of polycrystalline particles are predicted based on the velocity field. The research results provide a scientific basis for growing 6-inch SiC single crystals by TSSG method.

Keywords: top-seeded solution growth, silicon carbide single crystal, crystal rotation, numerical simulation

PACS: 81.10.Dn, 81.05.Ea, 44.27.+g

DOI: [10.7498/aps.74.20250595](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250595)

CSTR: [32037.14.aps.74.20250595](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20250595)

[†] Corresponding author. E-mail: lizaoyang@mail.xjtu.edu.cn

晶体旋转影响下的溶液法6英寸SiC单晶生长研究

杨焱 李早阳 高俊浩 祁冲冲 李登攀 武光辉 刘立军

Effects of crystal rotation on 6-inch SiC crystal growth by top-seeded solution growth method

YANG Yao LI Zaoyang GAO Junhao QI Chongchong LI Dengnian WU Guanghui LIU Lijun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 158101 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250595

CSTR: 32037.14.aps.74.20250595

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250595>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

高负偏光照稳定性的溶液法像素级IZTO TFT

Sol-gel indium-zinc-tin-oxide thin film transistor pixel array with superior stability under negative bias illumination stress

物理学报. 2022, 71(13): 138502 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220154>

低温快速制备基于溶液工艺的高性能氧化铟薄膜及晶体管

Low-temperature rapid preparation of high-performance indium oxide thin films and transistors based on solution technology

物理学报. 2024, 73(9): 096802 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240082>

地下黏弹性介质波动方程及波场数值模拟

Wave equation for underground viscoelastic media and wavefield numerical simulation

物理学报. 2021, 70(14): 149102 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210005>

基于55 nm DICE结构的单粒子翻转效应模拟研究

Three-dimensional numerical simulation of single event upset effect based on 55 nm DICE latch unit

物理学报. 2024, 73(6): 066103 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231564>

超临界CO₂池式传热流固耦合传热特性数值模拟

Numerical simulation of fluid-structure coupled heat transfer characteristics of supercritical CO₂ pool heat transfer

物理学报. 2024, 73(10): 104401 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231953>

疏水表面振动液滴模态演化与流场结构的数值模拟

Numerical simulation of modal evolution and flow field structure of vibrating droplets on hydrophobic surface

物理学报. 2021, 70(14): 144701 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210161>