

# (12) 按照专利合作条约所公布的国际申请

(19) 世界知识产权组织  
国际局

(43) 国际公布日  
2020年5月7日 (07.05.2020)



(10) 国际公布号  
**WO 2020/087724 A1**

- (51) 国际专利分类号:  
*C30B 29/36* (2006.01)     *C30B 23/00* (2006.01)
- (21) 国际申请号:                     PCT/CN2018/123719
- (22) 国际申请日:     2018年12月26日 (26.12.2018)
- (25) 申请语言:                             中文
- (26) 公布语言:                             中文
- (30) 优先权:  
201811303446.6     2018年11月2日 (02.11.2018)     CN  
201821802315.8     2018年11月2日 (02.11.2018)     CN
- (71) 申请人: 山东天岳先进材料科技有限公司  
(SICC CO., LTD.) [CN/CN]; 中国山东省济南市  
高新区新宇路西侧世纪财富中心 AB 座  
1106-6-01, Shandong 250100 (CN)。
- (72) 发明人: 李长进(LI, Changjin); 中国山东省济南市  
高新区新宇路西侧世纪财富中心 AB 座 1106-6-01,

Shandong 250100 (CN)。 李加林(LI, Jialin); 中国山东省济南市高新区新宇路西侧世纪财富中心 AB 座 1106-6-01, Shandong 250100 (CN)。 李宏刚(LI, Honggang); 中国山东省济南市高新区新宇路西侧世纪财富中心 AB 座 1106-6-01, Shandong 250100 (CN)。 刘家朋(LIU, Jiapeng); 中国山东省济南市高新区新宇路西侧世纪财富中心 AB 座 1106-6-01, Shandong 250100 (CN)。 孙元行(SUN, Yuanhang); 中国山东省济南市高新区新宇路西侧世纪财富中心 AB 座 1106-6-01, Shandong 250100 (CN)。 刘鹏飞(LIU, Pengfei); 中国山东省济南市高新区新宇路西侧世纪财富中心 AB 座 1106-6-01, Shandong 250100 (CN)。 高超(GAO, Chao); 中国山东省济南市高新区新宇路西侧世纪财富中心 AB 座 1106-6-01, Shandong 250100 (CN)。 宗艳民(ZONG, Yanmin); 中国山

(54) Title: METHOD FOR PREPARING HIGH QUALITY SILICON CARBIDE AND DEVICE THEREFOR

(54) 发明名称: 一种高品质碳化硅晶体的制备方法及其装置

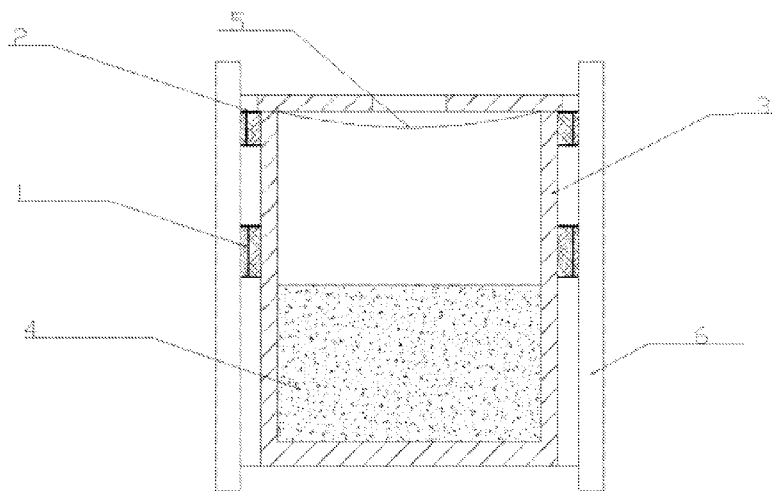


图 1

(57) Abstract: Disclosed is a method for preparing a high quality silicon carbide crystal. The method comprises the steps of thermal field assembly, heating, and crystal growing and cooling, wherein the thermal field assembly comprises: after placing a crystal-growing raw material and a silicon carbide seed crystal in a graphite crucible, disposing, on an outer wall of the graphite crucible, a first collar at a position approximately corresponding to the crystal-growing raw material and a second collar at a position approximately corresponding to the silicon carbide seed crystal, the thermal conductivity of the first collar being higher than that of graphite and the thermal conductivity of the second collar being lower than that of graphite. Further disclosed are a device and a thermal field structure for implementing the above method. The preparation method, device and thermal field structure can be used to increase the quality of a silicon carbide crystal by controlling the thermal field in a crystal-growing furnace, so as to avoid generation of carbon inclusion defects and to decrease the risk of crystal cracking, without requiring the introduction of additional components or complication of



WO 2020/087724 A1

东省济南市高新区新宇路西侧世纪财富中心  
AB座1106-6-01, Shandong 250100 (CN)。

(74) 代理人: 北京君慧知识产权代理事务所 (普通合伙) (BEIJING JUNHUI INTELLECTUAL PROPERTY AGENT OFFICE (ORDINARY PARTNERSHIP));  
中国北京市海淀区北四环西路 66 号  
中国技术交易大厦 A 座 1228-1230 室王  
宽, Beijing 100080 (CN)。

(81) 指定国(除另有指明, 要求每一种可提供的国家  
保护): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG,  
BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU,  
CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB,  
GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS,  
JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK,  
LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX,  
MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL,  
PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,  
SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,  
US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW。

(84) 指定国(除另有指明, 要求每一种可提供的地区  
保护): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ,  
NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 欧亚 (AM,  
AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 欧洲 (AL, AT, BE, BG,  
CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU,  
IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT,  
RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI,  
CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG)。

本国际公布:

— 包括国际检索报告(条约第21条(3))。

the preparation process.

(57) 摘要: 一种高品质碳化硅晶体的制备方法, 该方法包括热场组装、加热、长晶和冷却的步骤, 热场组装包括: 向石墨坩埚放置长晶原料和碳化硅籽晶后, 在石墨坩埚外壁与长晶原料大致对应的位置设置第一套环, 在与碳化硅籽晶大致对应的位置设置第二套环, 第一套环的热导率大于石墨, 第二套环的热导率小于石墨。以及一种实现上述方法的装置和热场结构。利用该制备方法和装置及热场结构, 无需额外引入其他组分或复杂化制备工艺, 通过控制长晶炉内的热场, 避免产生碳包裹体缺陷, 降低晶体开裂的风险, 提高碳化硅晶体的品质。

## 一种高品质碳化硅晶体的制备方法及其装置

### 技术领域

本申请涉及晶体生长技术领域，特别是涉及一种高品质碳化硅晶体的制备方法及其装置。

### 背景技术

碳化硅（SiC）单晶材料是第三代宽带隙半导体材料的代表，具有宽禁带、高热导率、高电子饱和迁移速率、高击穿电场等性质，被认为是制造光电子器件、高频大功率器件和高温电子器件等理想的半导体材料。物理气相输运法（PVT）法是目前广泛应用的生长 SiC 单晶的技术，采用 SiC 晶片作为籽晶，在石墨坩埚内装有 SiC 粉末作为生长原料，在特定的温场内，作为生长原料的碳化硅粉料分解升华成为气相组分。气相组分向温度相对较低的生长界面运动，并在生长界面上结晶，这个过程稳定的持续一段时间后，最终生长为单晶。

现有技术中 PVT 法生长 SiC 晶体所使用的石墨坩埚，为底部封闭的圆筒状结构，采用中频感应加热。在碳化硅晶体的生长初期，粉体原料发生分解升华，硅组分的蒸汽分压较高，绝大多数固态硅原子转变为气态硅原子或者气相组分  $Si_mC_n$ ，随着晶体继续生长，硅气氛不断升华减少，导致生长腔体内留下了富碳颗粒和石墨颗粒层，富碳颗粒会随气相组分上移到生长界面形成包裹体缺陷。碳包裹体会诱生微管、位错、层错等晶体缺陷，影响碳化硅晶体的品质及其作为衬底的性能。

美国专利 US 2008/0115719A1 提出在晶体生长腔室内加入氧化物与富碳颗粒发生反应，进而抑制碳包裹体的生成。但该方法会改变原有的原料组成，复杂化生产工艺，还会引入额外的杂质，影响碳化硅衬底的性能。

公布号 CN107385512A 的发明专利申请公开了一种抑制碳化硅单晶中碳包裹体缺陷的生长方法，通过增大长晶阶段的压力，减少碳化硅粉料的碳化，降低生长腔体内的轴向温梯，抑制碳包裹体的生成。该发明的问题在于，通过复杂化制备工艺，在长晶阶段二次升压，使得碳化硅粉料的碳化速率不易控制，碳化速率过快，硅组分升华过快易溢出，腐蚀坩埚和保温层，并且变化的温度和压力还会导致晶体应力增加，增大晶体开裂的风险。

### 发明内容

本申请所要解决的技术问题是，现有方法制备碳化硅晶体时，极易产生碳包裹体缺陷，获得的碳化硅晶体易产生裂痕。

为了解决上述问题，一方面，本申请提供了一种高品质碳化硅晶体的制备方法，包括热场组装、加热、长晶和冷却的步骤，其中，热场组装的具体操作包括如下步骤：

向石墨坩埚放置长晶原料和碳化硅籽晶后，在石墨坩埚外壁与长晶原料大致对应的位置设置第一套环，在与碳化硅籽晶大致对应的位置设置第二套环。其中，第一套环的热导率大于石墨，第二套环的热导率小于石墨。

进一步地，长晶原料为碳化硅粉料。优选地，碳化硅粉料升华至碳化硅籽晶的长晶界面进行长晶。

进一步地，第一套环与石墨的热导率差值为  $10-15\text{W}/(\text{m}\cdot\text{k})$ ，第二套环与石墨的热导率差值为  $15-20\text{W}/(\text{m}\cdot\text{k})$ 。

进一步地，第一套环包括石墨环，石墨环表面涂有金属涂层，其中金属选自钼、钽、钨中的一种构成，其中，金属纯度大于 99%。

进一步地，第二套环包括石墨环，石墨环表面涂有金属化合物涂层，其中金属化合物为氧化锆，纯度大于 99%。

进一步地，加热步骤包括通入惰性气体、升压和升温的步骤。升压包括将压力由标准大气压升至 8-15mbar，升温包括将温度由室温升至 2200-2600°C；优选的，升压的速率为 1-3mbar/h，升温的速率为 1-3°C/min。其中，通惰性气体前，需将长晶炉抽真空，再通入惰性气体保护 4-8h。升压步骤包括将压力由标准大气压升至 8-15mbar，优选升至 8mbar、10mbar 或 12mbar。升温步骤包括将温度由室温升至 2200-2600°C，优选升至 2400°C。

进一步地，长晶步骤包括，在达到加热步骤的既定温度和压力后，恒温恒压长晶，其中长晶时间为 180-250h，优选的长晶时间为 200h。

可选地，冷却步骤中包括由加热温度降至室温，其中降温时间为 15-25h，优选 20h。第一套环设在坩埚外壁的高度与坩埚内的长晶原料表面大致对应，第二套环设在坩埚外壁的高度与坩埚内的碳化硅籽晶的底部大致对应。

另一方面，本申请还提供了一种实现上述方法的装置，包括坩埚和保温层，坩埚内侧顶部固定放置碳化硅籽晶，坩埚内可放置碳化硅粉料，坩埚外壁设置第一套环和/或第二套环。第一套环的热导率大于坩埚的热导率和/或，坩埚的热导率大于第二套环的热导率。

进一步地，第一套环的位置与碳化硅粉料的位置大致对应，第二套环的位置与碳化硅籽晶的位置大致对应。

可选地，第一套环的高度为 30mm，石墨厚度为 5mm，金属涂层的厚度为 2mm；第二套环的高度为 20mm，石墨厚度为 5mm，金属化合物涂层的厚度为 2mm。

再一方面，本申请还提供了一种制备高品质碳化硅晶体的热场结构，包括石墨坩埚和保温层，其中，石墨坩埚内部放置碳化硅粉料，顶层固定有碳化硅籽晶，在石墨坩埚内放置碳化硅粉料的高度大致对应的石墨

坩埚外壁的位置设置第一套环，石墨坩埚放置碳化硅籽晶的高度大致对应的石墨坩埚外壁设置第二套环，第一套环和第二套环通过调节石墨坩埚的热传递效率以控制长晶时的热场分布。

进一步地，第一套环到石墨坩埚的投影面积低于第二套环到石墨坩埚的投影面积。优选地，第二套环的到石墨坩埚的投影高度不超过第一套环的到石墨坩埚的投影高度。

作为本申请针对性的设计特定热场一种实施方式：第一套环可以降低籽晶放置处的温度；第二套环可以升高原料表面的温度，形成特定的热场区域，改变坩埚内部的气相传输路径，从而实现快捷有效的热场和流体控制。

进一步地，第一套环到石墨坩埚的投影高度为 25-35mm，优选 28-32mm；第一套环的厚度为 4-8mm，优选 5-7mm。

进一步地，第一套环包括石墨环，石墨环表面涂有金属涂层，其中，金属的热导率高于石墨的热导率。

更进一步地，金属涂层厚度为 1-3mm，优选 2mm。

进一步地，第二套环的到石墨坩埚的投影高度为 15-25mm，优选 18-22mm；第二套环的厚度为 4-8mm，优选 5-7mm。

进一步地，第二套环包括石墨环，石墨环表面涂有金属化合物涂层，金属化合物的热导率低于石墨的热导率。

更进一步地，金属化合物涂层厚度为 1-3mm，优选 2mm。

进一步地，第一套环包括第一端面和第二端面，石墨坩埚内的碳化硅粉料表面不低于第一端面，且不高于第二端面。第二套环包括第三端面和第四端面，石墨坩埚内的碳化硅籽晶不低于第三端面，且不高于第四端面。即第一套高度与石墨坩埚内的碳化硅粉料表面基本持平，第二套的高度与碳化硅籽晶基本持平。

将涂有高热导率金属涂层的第一套环置于碳化硅粉料表面处，可以改变石墨坩埚内碳化硅粉料表面的温场，进而形成气相筛选层，减少气相携带碳颗粒的能力，进而避免碳包裹体的产生。将涂有低热导率金属化合物涂层的第二套环置于碳化硅籽晶处，可以控制晶体生长界面的径向温梯，保证晶体生长界面的温场均匀一致，控制晶体的生长速率及应力释放，降低开裂风险，提高晶体品质。

通过本申请能够带来如下有益效果：

1、本申请提供的制备碳化硅晶体的装置，在石墨坩埚外壁设置热导率大于石墨的第一套环，和热导率小于石墨的第二套环，以调节控制石墨坩埚内部的温场，减弱碳化硅粉料气相携带碳颗粒的能力，避免了碳包裹体缺陷的产生，同时保证晶体生长界面温场的均一，控制晶体的生长速率及应力释放，降低晶体开裂风险。

2、本申请提供的碳化硅晶体的制备方法，无需额外引入其他组分或复杂化制备工艺，使晶体生长速率稳定，避免晶体产生缺陷或裂纹。通过对比可得，本申请提供的碳化硅晶体的制备方法及装置可以制备出高品质的碳化硅晶体。

3、本申请提供的制备高品质碳化硅晶体的热场结构，通过设置导热率高于石墨的第一套环，控制石墨坩埚内部碳化硅粉料表面的温场，减少碳化硅粉料气相携带碳颗粒的能力，避免了碳包裹体缺陷的产生；通过设置导热率低于石墨的第二套环，控制碳化硅籽晶的温场，保证晶体生长界面温场的均一，控制晶体的生长速率及应力释放，降低晶体开裂风险，提高了碳化硅晶体品质。

#### 附图说明

此处所说明的附图用来提供对本申请的进一步理解，构成本申请的

一部分，本申请的示意性实施例及其说明用于解释本申请，并不构成对本申请的不当限定。在附图中：

图 1 是本申请提供的装置的优选实施例的结构示意图；

图 2 是对比例 1 获得的碳化硅晶体加工出的衬底扫描图；

图 3 是实施例 1 的碳化硅晶体加工出的衬底扫描图；

图 4 是对比例 1 获得的碳化硅晶体加工出的衬底的光学显微镜照片；

图 5 是实施例 1 获得的碳化硅晶体加工出的光学显微镜照片；

图中：1、金属涂层石墨环；2、金属化合物涂层石墨环；3、石墨坩埚；4、碳化硅粉料；5、碳化硅籽晶；6 保温层。

### 具体实施方式

为了更清楚的阐释本申请的整体构思，下面结合说明书附图以示例的方式进行详细说明。在下文的描述中，给出了大量具体的细节以便提供对本申请更为彻底的理解。然而，对于本领域技术人员来说显而易见的是，本申请可以无需一个或多个这些细节而得以实施。在其他的例子中，为了避免与本申请发生混淆，对于本领域公知的一些技术特征未进行描述。

如无特别说明，本说明书中所使用的石墨坩埚的尺寸为：160\*200\*215mm（内径\*外径\*高度）。碳化硅粉料通过商业途径购买或自制，优选自制，纯度为 99.9%。碳化硅晶体加工的衬底扫描，使用型号为 J232A Epson Perfection V30SE 的扫描仪。碳化硅晶体加工的衬底的光学显微镜照片拍摄，使用日本 Olympus 公司生产的型号为 Bx51 的光学显微镜获得。

一方面，本申请提供了一种制备高品质碳化硅的装置，包括坩埚和保温层，坩埚内侧顶部固定放置碳化硅籽晶，坩埚内可放置碳化硅粉料，坩埚外壁设置第一套环和/或第二套环。第一套环的热导率大于坩埚的热

导率和/或，坩埚的热导率大于第二套环的热导率。优选地，第一套环的位置与碳化硅粉料的位置大致对应，第二套环的位置与碳化硅籽晶的位置大致对应。

如图 1 所示，包括石墨坩埚 3 和保温层 6，石墨坩埚 3 内侧顶部中心突出区域粘合有碳化硅籽晶 5，石墨坩埚 3 内放置有碳化硅粉料 4，在石墨坩埚 3 内部放置碳化硅粉料的高度大致对应的石墨坩埚 3 外壁设置有第一套环，在石墨坩埚 3 内部放置碳化硅籽晶的高度大致对应的石墨坩埚 3 外壁设置有第二套环。第一套环和第二套环通过调节石墨坩埚的热传递效率以控制长晶时的热场分布。

优选地，第一套环到石墨坩埚的投影面积低于第二套环到石墨坩埚的投影面积，即在进行热场组装时，先放置第一套环，再放置第二套环。更优选地，第二套环和第一套环到石墨坩埚的投影的长度相同，第二套环的到石墨坩埚的投影高度不超过第一套环的到石墨坩埚的投影高度。

作为本申请针对性的设计特定热场一种实施方式：第一套环可以降低籽晶放置处的温度；第二套环可以升高原料表面的温度，形成特定的热场区域，改变坩埚内部的气相传输路径，从而实现快捷有效的热场和流体控制。

其中，第一套环到石墨坩埚的投影高度为 25-35mm，优选 28-32mm；第一套环的厚度为 4-8mm，优选 5-7mm。第一套环包括石墨环，石墨环表面涂有金属涂层，金属的热导率高于石墨的热导率。其中，金属涂层厚度为 1-3mm，优选 2mm。

在如图 1 所示的实施例中，第一套环为底部与石墨坩埚 3 内的碳化硅粉料 4 表面基本持平、外表面涂覆有金属涂层的金属涂层石墨环 1，高 30mm，总厚度为 7mm，其中，石墨厚度为 5mm，金属涂层厚度为 2mm。

如图 1，金属涂层石墨环 1 的底部与石墨坩埚 3 内的碳化硅粉料 4 表

面基本持平，由于金属的热导率高于石墨，导热效果提升，使得金属涂层石墨环 1 处的碳化硅粉料 4 表面的温场改变，温度较普通石墨坩埚更高，进而在碳化硅粉料 4 上方形成轴向的气相筛选层，减弱了碳化硅粉料在热场中升华时，气相碳化硅携带碳颗粒的能力，阻碍了碳颗粒上升至晶体生长表面的通道，进而避免在碳化硅晶体上产生碳包裹体。

其中，第二套环的到石墨坩埚的投影高度为 15-25mm，优选 18-22mm；第二套环的厚度为 4-8mm，优选 5-7mm。第二套环包括石墨环，石墨环表面涂有金属化合物涂层，金属化合物的热导率低于石墨的热导率。其中，金属化合物涂层厚度为 1-3mm，优选 2mm。

如图 1，第二套环为顶部与碳化硅籽晶 5 基本持平、外表面覆有金属化合物涂层的金属化合物涂层石墨环 2，高 20mm，总厚度为 7mm，其中石墨厚度为 5mm，金属化合物涂层厚度为 2mm，金属化合物优选为氧化锆，其中氧化锆的纯度大于 99%。

金属化合物涂层石墨环 2 置于石墨坩埚盖内侧的碳化硅籽晶 5 处，由于金属化合物的热导率低于石墨，导热效果降低，使得金属化合物涂层石墨环 2 处的碳化硅籽晶 5 表面的温场改变，温度较普通石墨坩埚更低，进而控制在碳化硅籽晶 5 的晶体生长界面的径向温场，保证晶体生长界面的温场的变化波动较小以及温度均匀一致，进而控制晶体的生长速率及应力释放，降低晶体开裂风险，提高晶体品质。

在另一种实施方式中，金属或金属化合物涂层也可以在套环内部，距离坩埚外壁 4-6mm 即可，即在金属或金属化合物涂层外表面还可以继续涂有石墨，仍可达到相同的技术效果。

在实际操作中，该装置的石墨坩埚 3 和保温层 6 之间需要设置感应线圈，用于提供制备碳化硅晶体所需的高温。其中，保温层 6 优选石墨软毡，包覆石墨坩埚的侧部、顶部和底部，以实现全封闭保温。

另一方面，本申请提供了一种高品质碳化硅晶体的制备方法，包括热场组装、加热、长晶和冷却的步骤，其中，热场组装的具体操作包括如下步骤：

向石墨坩埚放置长晶原料和碳化硅籽晶后，在石墨坩埚外壁与长晶原料大致对应的位置设置第一套环，在与碳化硅籽晶大致对应的位置设置第二套环。其中，第一套环的热导率大于石墨，第二套环的热导率小于石墨。

其中，长晶原料为碳化硅粉料。优选地，碳化硅粉料升华至碳化硅籽晶的长晶界面进行长晶。

优选地，第一套环与石墨的热导率差值为  $10-15\text{W}/(\text{m}\cdot\text{k})$ ，第二套环与石墨的热导率差值为  $15-20\text{W}/(\text{m}\cdot\text{k})$ 。

其中，第一套环包括石墨环，石墨环表面涂有金属涂层，其中金属选自钼、钽、钨中的一种构成，其中，金属纯度大于 99%。第二套环包括石墨环，石墨环表面涂有金属化合物涂层，其中金属化合物为氧化锆，纯度大于 99%。

其中，加热步骤包括通入惰性气体、升压和升温的步骤。升压包括将压力由标准大气压升至  $8-15\text{mbar}$ ，升温包括将温度由室温升至  $2200-2600^\circ\text{C}$ ；优选的，升压的速率为  $1-3\text{mbar}/\text{h}$ ，升温的速率为  $1-3^\circ\text{C}/\text{min}$ 。其中，通惰性气体前，需将长晶炉抽真空，再通入惰性气体保护  $4-8\text{h}$ 。升压步骤包括将压力由标准大气压升至  $8-15\text{mbar}$ ，优选升至  $8\text{mbar}$ 、 $10\text{mbar}$  或  $12\text{mbar}$ 。升温步骤包括将温度由室温升至  $2200-2600^\circ\text{C}$ ，优选升至  $2400^\circ\text{C}$ 。

其中，长晶步骤包括，在达到加热步骤的既定温度和压力后，恒温恒压长晶，其中长晶时间为  $180-250\text{h}$ ，优选的长晶时间为  $200\text{h}$ 。

可选地，冷却步骤中包括由加热温度降至室温，其中降温时间为

15-25h, 优选 20h。第一套环设在坩埚外壁的高度与坩埚内的长晶原料表面大致对应, 第二套环设在坩埚外壁的高度与坩埚内的碳化硅籽晶的底部大致对应。

如无特别说明, 本说明书的方法实施例 1-3 均使用本申请所述装置。

#### 实施例 1

S1, 将 6 kg 的碳化硅粉料放入石墨坩埚中, 盖好粘有碳化硅籽晶的坩埚上盖, 在石墨坩埚外壁依次放置钼涂层石墨环和氧化锆涂层石墨环, 其中钼涂层石墨环置于碳化硅粉料表面处, 氧化锆涂层石墨环置于碳化硅籽晶表面处, 再包覆好保温层后, 密封长晶炉;

S2, 将长晶炉抽真空, 通入氦气保护 5h, 先以 2mbar/h 的速率将压力升至 10mbar, 再以 2.5°C/min 的速率在 15h 内将温度升至 2400°C;

S3, 在 10mbar、2400°C 的条件下, 恒温恒压长晶, 生长时间为 200h;

S4, 降温冷却 20h, 升压开炉, 获得碳化硅晶体。

#### 实施例 2

S1, 将 6 kg 的碳化硅粉料放入石墨坩埚中, 盖好粘有碳化硅籽晶的坩埚上盖, 在石墨坩埚外壁依次放置钽涂层石墨环和氧化锆涂层石墨环, 其中钽涂层石墨环置于碳化硅粉料表面处, 氧化锆涂层石墨环置于碳化硅籽晶表面处, 再包覆好保温层后, 密封长晶炉;

S2, 将长晶炉抽真空, 通入氦气保护 7h, 先以 1mbar/h 的速率将压力升至 12mbar, 再以 3°C/min 的速率在 14h 内将温度升至 2350°C;

S3, 在 12mbar、2350°C 的条件下, 恒温恒压长晶, 生长时间为 210h;

S4, 降温冷却 18h, 升压开炉, 获得碳化硅晶体。

#### 实施例 3

S1, 将 6 kg 的碳化硅粉料放入石墨坩埚中, 盖好粘有碳化硅籽晶的坩埚上盖, 在石墨坩埚外壁依次放置钨涂层石墨环和氧化锆涂层石墨环,

其中钨涂层石墨环置于碳化硅粉料表面处，氧化锆涂层石墨环置于碳化硅籽晶表面处，再包覆好保温层后，密封长晶炉；

S2，将长晶炉抽真空，通入氩气保护 6h，先以 3mbar/h 的速率将压力升至 15mbar，再以 2.2°C/min 的速率在 18h 内将温度升至 2450°C；

S3，在 15mbar、2450°C 的条件下，恒温恒压长晶，生长时间为 190h；

S4，降温冷却 24h，升压开炉，获得碳化硅晶体。

对比例 1

S1，将 6 kg 的碳化硅粉料放入石墨坩埚中，盖好粘有碳化硅籽晶的坩埚上盖，包覆好保温层后，密封长晶炉；

S2，将长晶炉抽真空，通入氩气保护 2h，将压力升至 5mbar，温度升至 2450°C，升温升压同时进行，达既定压力和温度后，稳定长晶 35h；

S3，温度不变，再次升压至 50mbar，稳定长晶 60h；

S4，降温冷却 17h，升压开炉，获得碳化硅晶体。

用扫描仪和光学显微镜分别对将实施例 1 和对比例 1 获得的碳化硅晶体进行观察检测，所得结果如图 2-图 5 所示。

图 2 是对比例 1 获得的碳化硅晶体加工出的衬底扫描图，由图可见，碳包裹体缺陷成非常明显的放射状，肉眼可观察到细小的裂纹。

图 3 是实施例 1 获得的碳化硅晶体加工出的衬底扫描图，由图可见，该衬底未发现碳包裹体缺陷或晶体裂纹。

图 4 是对比例 1 获得的碳化硅晶体加工出的衬底的光学显微镜照片，图中明显可见大量的碳包裹体缺陷。

图 5 是实施例 1 获得的碳化硅晶体加工出的衬底的光学显微镜照片，图中几乎没有碳包裹体缺陷。

综上所述，使用本申请提供的碳化硅晶体的制备方法及其装置，无需额外添加其他组分或复杂化制备工艺，即可抑制碳包裹体缺陷的生成，

降低晶体开裂的风险，制备出高品质的碳化硅晶体。

以上所述仅为本申请的实施例而已，并不用于限制本申请。对于本领域技术人员来说，本申请可以有各种更改和变化。凡在本申请的精神和原理之内所作的任何修改、等同替换、改进等，均应包含在本申请的权利要求范围之内。

## 权利要求

1、一种高品质碳化硅晶体的制备方法，包括热场组装、加热、长晶和冷却的步骤，其特征在于，所述热场组装包括下述步骤：

向石墨坩埚放置长晶原料和碳化硅籽晶后，在石墨坩埚外壁与长晶原料大致对应的位置设置第一套环，在与碳化硅籽晶大致对应的位置设置第二套环，所述第一套环的热导率大于石墨，所述第二套环的热导率小于石墨。

2、根据权利要求1所述的制备方法，其特征在于，所述长晶原料为碳化硅粉料。

3、根据权利要求1所述的制备方法，其特征在于，所述第一套环与石墨的热导率差值为  $10-15\text{W}/(\text{m}\cdot\text{k})$ ，所述第二套环与石墨的热导率差值为  $15-20\text{W}/(\text{m}\cdot\text{k})$ 。

4、根据权利要求1所述的制备方法，其特征在于，所述第一套环包括石墨环，所述石墨环表面涂有金属涂层，所述金属涂层选自钼、钽和钨中的一种，金属纯度大于99%。

5、根据权利要求1所述的制备方法，其特征在于，所述第二套环包括石墨环，所述石墨环表面涂有金属化合物涂层，所述金属化合物为氧化锆，纯度大于99%。

6、根据权利要求1所述的制备方法，其特征在于，所述加热步骤包括通入惰性气体、升压和升温的步骤，所述升压包括将压力由标准大气压升至  $8-15\text{mbar}$ ，所述升温包括将温度由室温升至  $2200-2600^\circ\text{C}$ 。

7、根据权利要求6所述的制备方法，其特征在于，所述升压的速率为  $1-3\text{mbar/h}$ ，升温的速率为  $1-3^\circ\text{C}/\text{min}$ 。

8、根据权利要求1所述的制备方法，其特征在于，所述长晶步骤包

括，在达到加热步骤的既定温度和压力后，恒温恒压长晶，所述长晶时间为 180-250h。

9、一种用于权利要求 1-8 任一所述方法的装置，其特征在于，包括坩埚和保温层，所述坩埚顶部内侧放置碳化硅籽晶，所述坩埚内放置碳化硅粉料，

所述坩埚外壁设置第一套环和/或第二套环；

所述第一套环的热导率大于所述坩埚的热导率和/或，所述坩埚的热导率大于所述第二套环的热导率。

10、根据权利要求 9 所述的装置，其特征在于，所述第一套环的位置与碳化硅粉料的位置大致对应，所述第二套环的位置与碳化硅籽晶的位置大致对应。

11、一种制备高品质碳化硅晶体的热场结构，其特征在于，包括石墨坩埚和保温层，所述石墨坩埚内部放置碳化硅粉料，顶层固定有碳化硅籽晶，在所述石墨坩埚内放置碳化硅粉料的高度大致对应的石墨坩埚外壁的位置设置第一套环和，所述石墨坩埚放置碳化硅籽晶的高度大致对应的石墨坩埚外壁设置第二套环，所述第一套环和所述第二套环通过调节所述石墨坩埚的热传递效率以控制长晶时的热场分布。

12、根据权利要求 11 所述的热场结构，其特征在于，所述第一套环到所述石墨坩埚的投影面积低于所述第二套环到所述石墨坩埚的投影面积。

13、根据权利要求 11 所述的热场结构，其特征在于，所述第一套环到所述石墨坩埚的投影高度为 25-35mm，所述第一套环的厚度为 4-8mm。

14、根据权利要求 11 所述的热场结构，其特征在于，所述第一套环包括石墨环，所述石墨环表面涂有金属涂层，所述金属的热导率高于石墨的热导率。

15、根据权利要求 14 所述的热场结构，其特征在于，所述金属涂层的厚度为 1-3mm。

16、根据权利要求 11 所述的热场结构，其特征在于，所述第二套环到所述石墨坩埚的投影高度为 15-25mm，所述第二套环的厚度为 4-8mm。

17、根据权利要求 11 所述的热场结构，其特征在于，所述第二套环包括石墨环，所述石墨环表面涂有金属化合物涂层，所述金属化合物的热导率低于石墨的热导率。

18、根据权利要求 17 所述的热场结构，其特征在于，所述金属化合物涂层的厚度为 1-3mm。

19、根据权利要求 11 所述的热场结构，其特征在于，所述第一套环包括第一端面和第二端面，石墨坩埚内的碳化硅粉料不低于第一端面，且不高于第二端面，

所述第二套环包括第三端面和第四端面，石墨坩埚(3)内的碳化硅籽晶(5)不低于第三端面，且不高于第四端面。

20、根据权利要求 11-19 所述的热场结构，其特征在于，所述保温层包覆在所述石墨坩埚的侧部、顶部和底部，以实现全封闭保温。

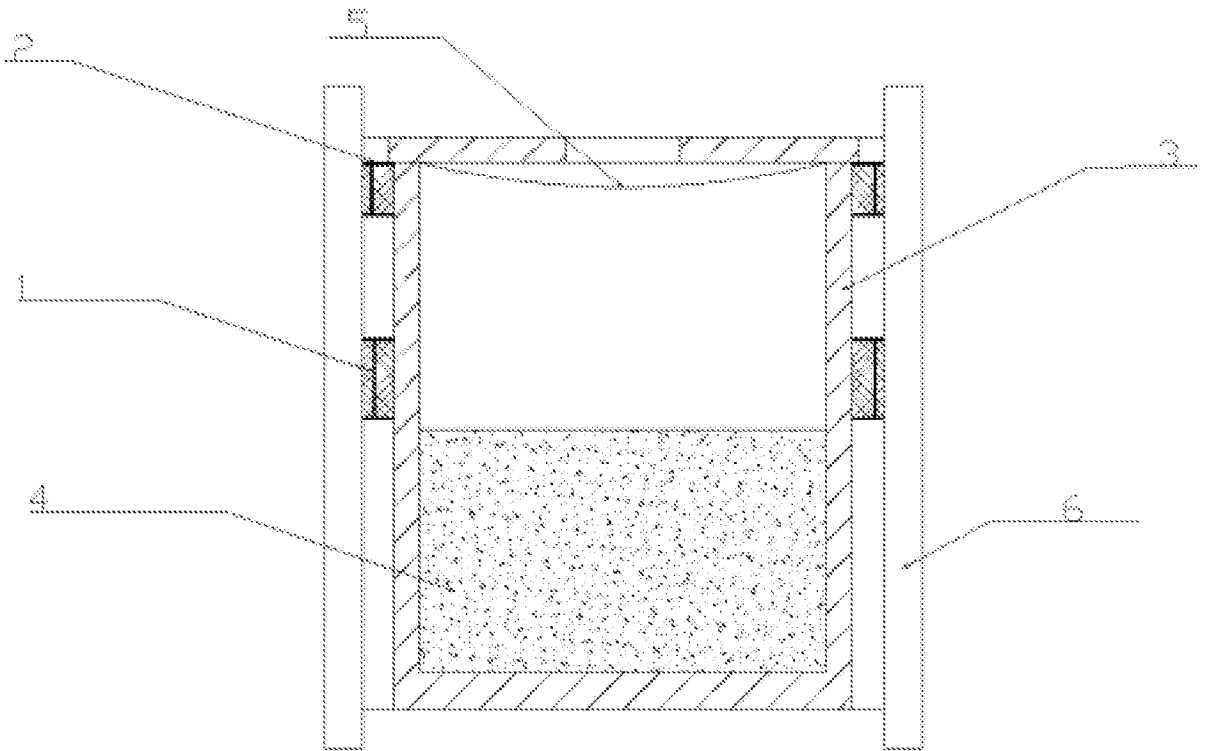


图 1

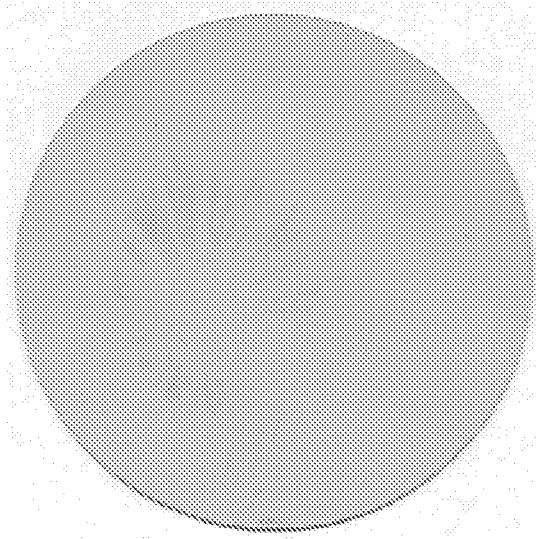


图 2

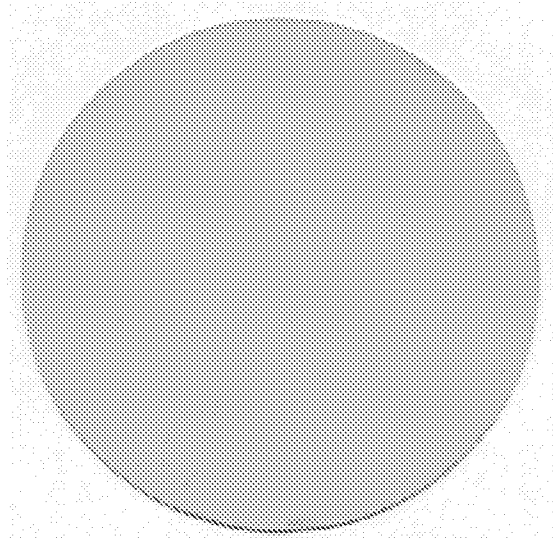


图 3

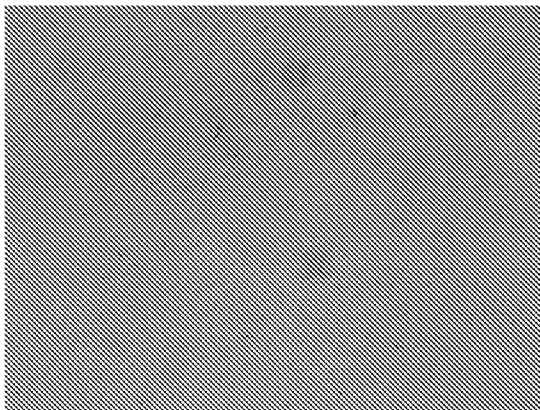


图 4

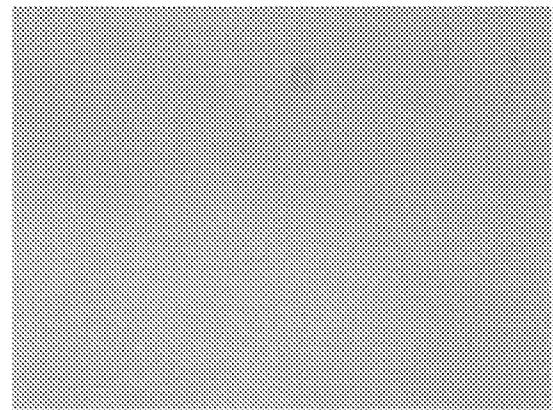


图 5

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/CN2018/123719

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
C30B 29/36(2006.01)i; C30B 23/00(2006.01)i		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
C30B		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
CNABS, VEN, CNKI, CNTXT: 碳化硅, 晶体, 热导率, 导热, 温场, 梯度, 温度, 环, 坩埚, 石墨, 钨, 钼, 氧化锆, carbon silicon, SiC, crystal, thermal conductivity, heat conductivity, field, temperature, gradient, ring, crucible, graphite, tungsten, molybdenum, Mo, W, zirconia		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	CN 204417638 U (HEBEI TONGGUANG CRYSTAL CO., LTD.) 24 June 2015 (2015-06-24) description, paragraphs [0020]-[0030], and figure 1	1-20
Y	CN 203096233 U (HEBEI TONGGUANG CRYSTAL CO., LTD.) 31 July 2013 (2013-07-31) description, paragraphs [0023]-[0026], and figure 2	1-20
Y	CN 202730295 U (TIANWEI NEW ENERGY HOLDINGS CO., LTD.) 13 February 2013 (2013-02-13) description, paragraphs [0020]-[0022], and figure 2	1-20
Y	CN 102808214 A (TIANWEI NEW ENERGY HOLDINGS CO., LTD.) 05 December 2012 (2012-12-05) description, paragraphs [0021]-[0028], and figure 2	1-20
A	CN 108018601 A (QINGYUAN FIRST RARE MATERIALS CO., LTD.) 11 May 2018 (2018-05-11) entire document	1-20
A	CN 108374197 A (XI'AN UNIVERSITY OF TECHNOLOGY) 07 August 2018 (2018-08-07) entire document	1-20
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "D" document cited by the applicant in the international application "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
18 June 2019		19 July 2019
Name and mailing address of the ISA/CN		Authorized officer
China National Intellectual Property Administration (ISA/ CN) No. 6, Xitucheng Road, Jimenqiao, Haidian District, Beijing 100088 China		
Facsimile No. (86-10)62019451		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

**PCT/CN2018/123719**

<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 08208394 A (NIPPON STEEL CORP.) 13 August 1996 (1996-08-13) entire document	1-20
A	US 2011300323 A1 (STRAUBINGER THOMAS et al.) 08 December 2011 (2011-12-08) entire document	1-20
A	JP 2011190129 A (BRIDGESTONE CORP.) 29 September 2011 (2011-09-29) entire document	1-20

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/CN2018/123719**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
CN	204417638	U	24 June 2015	None			
CN	203096233	U	31 July 2013	None			
CN	202730295	U	13 February 2013	None			
CN	102808214	A	05 December 2012	CN	102808214	B	10 June 2015
CN	108018601	A	11 May 2018	None			
CN	108374197	A	07 August 2018	None			
JP	08208394	A	13 August 1996	None			
US	2011300323	A1	08 December 2011	US	8865324	B2	21 October 2014
				DE	102010029756	A1	08 December 2011
JP	2011190129	A	29 September 2011	None			

<p><b>A. 主题的分类</b></p> <p>C30B 29/36(2006.01)i; C30B 23/00(2006.01)i</p> <p>按照国际专利分类(IPC)或者同时按照国家分类和IPC两种分类</p>																										
<p><b>B. 检索领域</b></p> <p>检索的最低限度文献(标明分类系统和分类号)</p> <p>C30B</p> <p>包含在检索领域中的除最低限度文献以外的检索文献</p> <p>在国际检索时查阅的电子数据库(数据库的名称, 和使用的检索词(如使用))</p> <p>CNABS, VEN, CNKI, CNTXT: 碳化硅, 晶体, 热导率, 导热, 温场, 梯度, 温度, 环, 坩埚, 石墨, 钨, 钼, 氧化锆, carbon silicon, SiC, crystal, thermal conductivity, heat conductivity, field, temperature, gradient, ring, crucible, graphite, tungsten, molybdenum, Mo, W, zirconia</p>																										
<p><b>C. 相关文件</b></p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>类型*</th> <th>引用文件, 必要时, 指明相关段落</th> <th>相关的权利要求</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Y</td> <td>CN 204417638 U (河北同光晶体有限公司) 2015年 6月 24日 (2015 - 06 - 24) 说明书第[0020]-[0030]段、附图1</td> <td>1-20</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>CN 203096233 U (河北同光晶体有限公司) 2013年 7月 31日 (2013 - 07 - 31) 说明书第[0023]-[0026]段、附图2</td> <td>1-20</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>CN 202730295 U (天威新能源控股有限公司) 2013年 2月 13日 (2013 - 02 - 13) 说明书第[0020]-[0022]段、附图2</td> <td>1-20</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>CN 102808214 A (天威新能源控股有限公司) 2012年 12月 5日 (2012 - 12 - 05) 说明书第[0021]-[0028]段、附图2</td> <td>1-20</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>CN 108018601 A (清远先导材料有限公司) 2018年 5月 11日 (2018 - 05 - 11) 全文</td> <td>1-20</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>CN 108374197 A (西安理工大学) 2018年 8月 7日 (2018 - 08 - 07) 全文</td> <td>1-20</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 08208394 A (NIPPON STEEL CORP) 1996年 8月 13日 (1996 - 08 - 13) 全文</td> <td>1-20</td> </tr> </tbody> </table>			类型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求	Y	CN 204417638 U (河北同光晶体有限公司) 2015年 6月 24日 (2015 - 06 - 24) 说明书第[0020]-[0030]段、附图1	1-20	Y	CN 203096233 U (河北同光晶体有限公司) 2013年 7月 31日 (2013 - 07 - 31) 说明书第[0023]-[0026]段、附图2	1-20	Y	CN 202730295 U (天威新能源控股有限公司) 2013年 2月 13日 (2013 - 02 - 13) 说明书第[0020]-[0022]段、附图2	1-20	Y	CN 102808214 A (天威新能源控股有限公司) 2012年 12月 5日 (2012 - 12 - 05) 说明书第[0021]-[0028]段、附图2	1-20	A	CN 108018601 A (清远先导材料有限公司) 2018年 5月 11日 (2018 - 05 - 11) 全文	1-20	A	CN 108374197 A (西安理工大学) 2018年 8月 7日 (2018 - 08 - 07) 全文	1-20	A	JP 08208394 A (NIPPON STEEL CORP) 1996年 8月 13日 (1996 - 08 - 13) 全文	1-20
类型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求																								
Y	CN 204417638 U (河北同光晶体有限公司) 2015年 6月 24日 (2015 - 06 - 24) 说明书第[0020]-[0030]段、附图1	1-20																								
Y	CN 203096233 U (河北同光晶体有限公司) 2013年 7月 31日 (2013 - 07 - 31) 说明书第[0023]-[0026]段、附图2	1-20																								
Y	CN 202730295 U (天威新能源控股有限公司) 2013年 2月 13日 (2013 - 02 - 13) 说明书第[0020]-[0022]段、附图2	1-20																								
Y	CN 102808214 A (天威新能源控股有限公司) 2012年 12月 5日 (2012 - 12 - 05) 说明书第[0021]-[0028]段、附图2	1-20																								
A	CN 108018601 A (清远先导材料有限公司) 2018年 5月 11日 (2018 - 05 - 11) 全文	1-20																								
A	CN 108374197 A (西安理工大学) 2018年 8月 7日 (2018 - 08 - 07) 全文	1-20																								
A	JP 08208394 A (NIPPON STEEL CORP) 1996年 8月 13日 (1996 - 08 - 13) 全文	1-20																								
<p><input checked="" type="checkbox"/> 其余文件在C栏的续页中列出。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 见同族专利附件。</p>																										
<p>* 引用文件的具体类型:</p> <p>“A” 认为不特别相关的表示了现有技术一般状态的文件</p> <p>“E” 在国际申请日的当天或之后公布的在先申请或专利</p> <p>“L” 可能对优先权要求构成怀疑的文件, 或为确定另一篇引用文件的公布日而引用的或者因其他特殊理由而引用的文件(如具体说明的)</p> <p>“O” 涉及口头公开、使用、展览或其他方式公开的文件</p> <p>“P” 公布日先于国际申请日但迟于所要求的优先权日的文件</p> <p>“T” 在申请日或优先权日之后公布, 与申请不相抵触, 但为了理解发明之理论或原理的在后文件</p> <p>“X” 特别相关的文件, 单独考虑该文件, 认定要求保护的发明不是新颖的或不具有创造性</p> <p>“Y” 特别相关的文件, 当该文件与另一篇或者多篇该类文件结合并且这种结合对于本领域技术人员为显而易见时, 要求保护的发明不具有创造性</p> <p>“&amp;” 同族专利的文件</p>																										
<p>国际检索实际完成的日期</p> <p>2019年 6月 18日</p>		<p>国际检索报告邮寄日期</p> <p>2019年 7月 19日</p>																								
<p>ISA/CN的名称和邮寄地址</p> <p>中国国家知识产权局(ISA/CN) 中国北京市海淀区蓟门桥西土城路6号 100088</p> <p>传真号 (86-10)62019451</p>		<p>授权官员</p> <p>李星星</p> <p>电话号码 62085398</p>																								

C. 相关文件		
类型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求
A	US 2011300323 A1 (STRAUBINGER THOMAS等) 2011年 12月 8日 (2011 - 12 - 08) 全文	1-20
A	JP 2011190129 A (BRIDGESTONE CORP) 2011年 9月 29日 (2011 - 09 - 29) 全文	1-20

国际检索报告  
关于同族专利的信息

国际申请号

PCT/CN2018/123719

检索报告引用的专利文件			公布日 (年/月/日)	同族专利			公布日 (年/月/日)
CN	204417638	U	2015年 6月 24日	无			
CN	203096233	U	2013年 7月 31日	无			
CN	202730295	U	2013年 2月 13日	无			
CN	102808214	A	2012年 12月 5日	CN	102808214	B	2015年 6月 10日
CN	108018601	A	2018年 5月 11日	无			
CN	108374197	A	2018年 8月 7日	无			
JP	08208394	A	1996年 8月 13日	无			
US	2011300323	A1	2011年 12月 8日	US	8865324	B2	2014年 10月 21日
				DE	102010029756	A1	2011年 12月 8日
JP	2011190129	A	2011年 9月 29日	无			