

УДК 536-421,548-55

АНАЛИЗ ХАРАКТЕРИСТИК ПРОФИЛЬНЫХ КРИВЫХ МЕНИСКОВ ПРИ РОСТЕ БАЗИСНОГРАНИЧЕННЫХ САПФИРОВЫХ ЛЕНТ

© 2009 г. А. А. Асрян¹, С. Н. Россоленко¹, В. Н. Курлов¹, В. М. Крымов²

E-mail: kurlov@issp.ac.ru; ross@issp.ac.ru

Измерена зависимость параметров ступенек на поверхности базисноограниченных лент сапфира от угла отклонения кристаллографической ориентации. Предложена модель образования ступеней на боковой поверхности лент. Показан гистерезисный характер зависимости угла наклона боковой поверхности ленты от угла касательной к мениску в тройной точке. Рассчитаны формы боковых поверхностей и определены границы изменения углов наклона касательной к мениску.

ВВЕДЕНИЕ

При выращивании способом Степанова монокристаллических лент сапфира 90-градусной ориентации (плоскость лент совпадает с кристаллографической базисной плоскостью) возможно получение атомно-гладкой поверхности ленты за счет выхода на поверхность ленты базисной грани, т.е. базисноограниченной (БО) ленты. Технически это осуществить достаточно трудно, так как для этого необходимо обеспечить как строгое совпадение кристаллографических и геометрических плоскостей ленты, так и постоянство толщины ленты. Первое условие может быть достигнуто строгой ориентацией затравочного кристалла относительно направления вытягивания и относительно кромок формообразователя. Второе условие связано с параметрами жидкого столба расплава на фронте кристаллизации и стабильностью капиллярных и тепловых условий процесса роста. В [1] показано, что при юстировке затравки с точностью нескольких угловых минут с помощью отражения лазерного луча от граней на затравочном кристалле можно получить зеркальные участки на поверхности ленты размером в несколько квадратных сантиметров. Однако на поверхности ленты оставались ступеньки роста. Вертикальные ступеньки образуются на краях из-за уменьшения толщины ленты. Горизонтальные связаны как с остаточной разориентацией, так и с незначительным изменением высоты фронта кристаллизации в процессе роста.

Если при выращивании БО-ленты кристаллографическая плоскость базиса наклонена от направления вытягивания на небольшой угол, то на боковой поверхности наблюдаются строго периодические ступени, размер которых зависит от наклона плоскости базиса к вертикали [2, 3]. Каж-

дая из ступеней состоит из двух частей – сингулярной грани (1000) и другой части – несингулярной поверхности округлой формы. Более детальное изучение этой поверхности с помощью оптического микроскопа [4] показывает, что она тоже составлена из ступенек микронных размеров, образованных той же гранью.

В [2] участки поверхности между ограниченными ступеньками считаются изотропными, и для описания их формы применяется аппроксимация экспоненциальной функцией. Показано, что такая аппроксимация может хорошо приближать результаты экспериментальных наблюдений. Однако какое-либо обоснование выбора такой аппроксимирующей функции не сделано. В [3] показано, что структура ступенек роста на противоположных сторонах БО-ленты различна и это связано с тем, что углы роста и форма менисков на противоположных сторонах БО-ленты с наклонной ориентацией разные. В работах В.В. Воронкова [5–7] теоретически рассмотрены вопросы формирования граней при выращивании кристаллов из расплава и объясняется природа огранки полупроводниковых кристаллов германия и кремния. При этом также участки поверхности между гранями считаются несингулярными поверхностями.

Учитывая, что в данной работе рассматриваются макроскопические эффекты капиллярного формообразования, будем также рассматривать эту поверхность как “изотропную”, понимая при этом, что в отличие от классической шероховатой поверхности она состоит из микроскопических гранных ступенек. Механизм образования такой тонкой структуры на этой поверхности на сегодня неясен и требует отдельного рассмотрения.

В целом природа образования граней при капиллярном формообразовании выращиваемых кристаллов сапфира изучена недостаточно. В данной работе приведены экспериментальные результаты изучения поверхности БО-лент сап-

¹ Учреждение Российской академии наук Институт физики твердого тела РАН, Черноголовка.

² Учреждение Российской академии наук Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург.

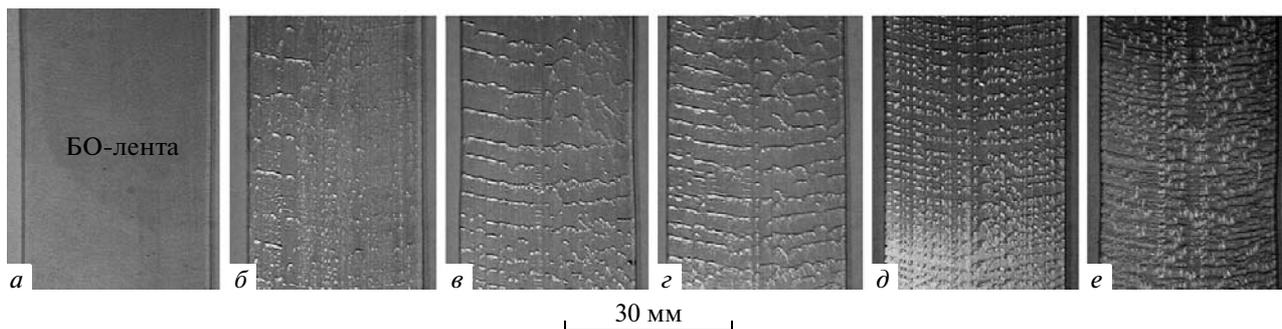


Рис. 1. Фотографии поверхности БО-лент, выращенных с заданным наклоном базисной плоскости относительно поверхности ленты. Направление вытягивания и нормали к плоскости базиса и поверхности ленты лежат в одной плоскости. Углы наклона: *a* – 0°, *б* – 0.35°, *в* – 1.1°, *г* – 1.7°, *д* – 2.7°, *е* – 5°.

фира при различных углах отклонения ориентации, проведен анализ изменения угловых соотношений наклона мениска и боковой поверхности растущего кристалла в тройной точке, выполнено численное моделирование формы мениска расплава при выращивании сапфировой БО-ленты, и рассчитана форма боковой поверхности кристалла.

ВЫРАЩИВАНИЕ БО-ЛЕНТ С НАКЛОННОЙ ОРИЕНТАЦИЕЙ

Для изучения структуры поверхности БО-лент были выращены ленты с заданным наклоном нормали базисной грани относительно поверхности ленты. При этом направление вытягивания и нормалей к базисной грани и к поверхности ленты лежат в одной плоскости. Ленты выращивались из молибденового формообразователя и тигля в графитовой резистивной тепловой зоне. Скорость выращивания 7 мм/мин. Точность ориентации обеспечивалась применением затравочных кристаллов с базисными (реперными) участками граней и лазерной ориентацией затравки непосредственно в ростовой камере. Погрешность ориентации не превышала нескольких угловых минут. Условие постоянства толщины ленты обеспечивалось конструкцией формообразователя, выполненного с изгибом верхних кромок по ширине ленты в соответствии с кривизной изотерм теплового поля в зоне выращивания, высокой стабилизацией процесса с визуальным контролем ширины ленты в процессе роста. Фотографии поверхности таких лент для углов наклона 0°, 0.35°, 1.1°, 1.7°, 2.7°, 5° показаны на рис. 1. Видно, что поверхность ленты с гранью, наклоненной в сторону расплава, состоит из периодически повторяющихся зеркальных (ограниченных) участков, разделенных переходными областями, повторяющими форму фронта кристаллизации. На поверхности противоположной стороны ленты также присутствуют ступени с более мелким шагом. На рис. 2а приведена схема

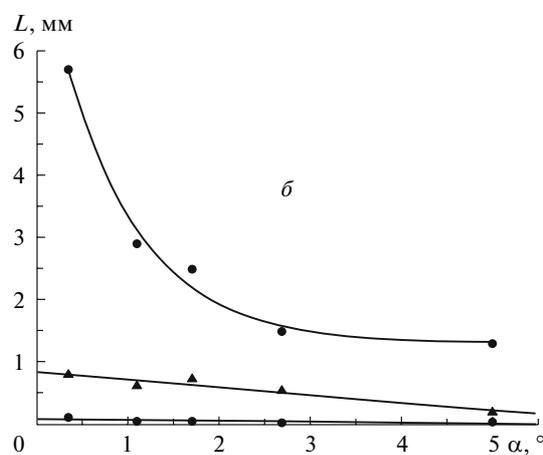
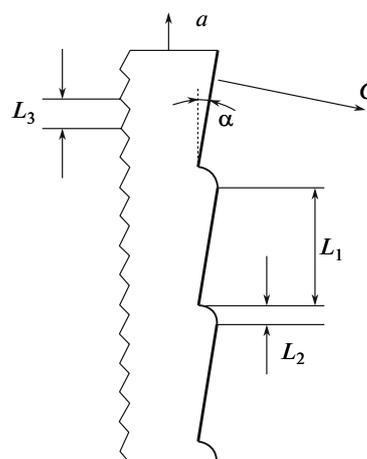


Рис. 2. Схема продольного сечения БО-ленты при малом отклонении кристаллографической ориентации (*a*) и зависимость шага ступеней от угла наклона ориентации (*б*). Верхняя кривая – длина граней, наклоненных в сторону расплава (L_1), средняя – длина участков расширения (L_2), нижняя – период ступеней на обратной стороне ленты (L_3).

продольного сечения ленты, а на рис. 2б – измененная зависимость шага ступеней от угла наклона грани к направлению вытягивания. Видно, что

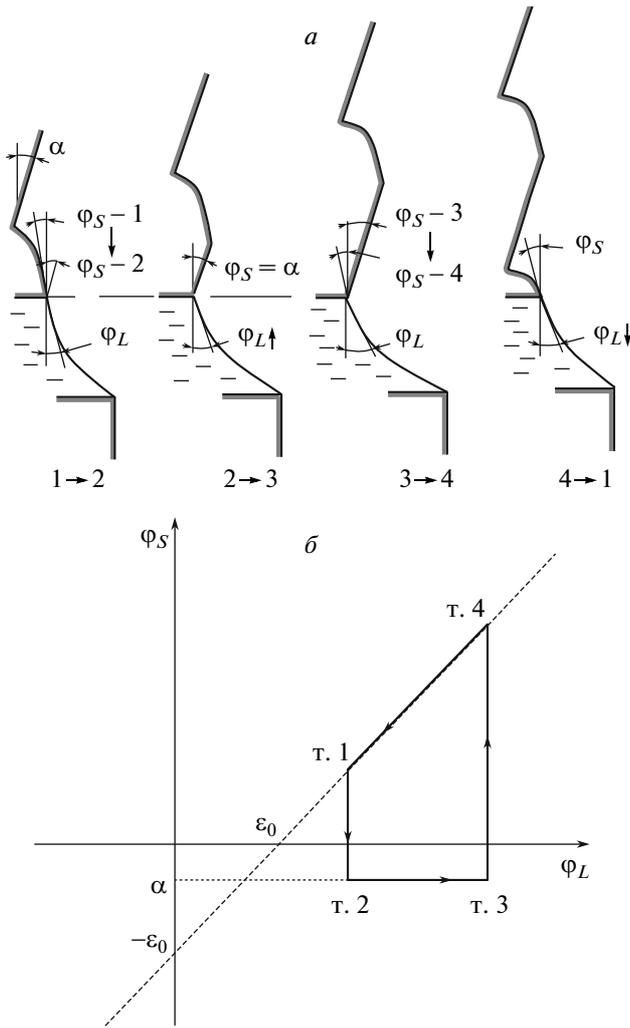


Рис. 3. Схема образования ступеней на боковой стороне базисноограненной ленты (*a*) и гистерезисная зависимость угла наклона боковой поверхности кристалла (φ_S) от угла касательной к мениску в тройной точке (φ_L) для случая роста базисноограненной ленты (*b*). ε_0 – равновесный угол роста, α – угол разориентации кристалла.

При уменьшении угла наклона размер ограненных участков увеличивается быстрее размера участков изотропной поверхности.

МОДЕЛЬ ОБРАЗОВАНИЯ СТУПЕНЧАТОЙ ПОВЕРХНОСТИ БО ЛЕНТЫ

Очевидно, что в процессе роста базисноограненной ленты происходит периодическое изменение механизма формирования поверхности: этап огранения сменяется этапом роста изотропной поверхности и т.д. При этом заметные колебания мениска не наблюдаются. Предположим, что высота фронта кристаллизации остается в процессе роста постоянной и натекание расплава на грань отсутствует. Предположим также, что

при росте изотропной поверхности выполняется условие постоянства угла роста ε_0 и угол наклона боковой поверхности кристалла $\varphi_S = \varphi_L - \varepsilon_0$, где φ_L – угол наклона касательной к мениску в тройной точке. На этапе роста ограненного участка угол φ_S постоянен и равен углу разориентации заправки относительно направления вытягивания α . При этом угол φ_L может принимать любые значения и определяется из условия зацепления мениска за кромку формообразователя и постоянства высоты мениска в процессе роста.

Рассмотрим, как будут изменяться углы наклона касательных к боковой поверхности кристалла φ_S и к мениску φ_L в тройной точке. С момента начала роста грани на боковой поверхности кристалла (рис. 3*a*) перестает выполняться условие постоянства угла роста, что приводит к скачкообразному уменьшению угла φ_S с изменением знака на противоположный (переход из точки 1 в точку 2 на диаграмме рис. 3*b*). В процессе роста грани, угол φ_S не меняется (участок 2→3). По мере уменьшения толщины кристалла (вследствие роста грани) величина угла φ_L увеличивается, и, по достижении критического значения φ_L^{\max} , происходит скачок из точки 3 в точку 4. Это соответствует переходу от этапа огранения к этапу роста изотропной поверхности, который происходит на участке 4→1.

Таким образом, на зависимости $\varphi_S(\varphi_L)$ имеет место гистерезис, т.е. разный характер зависимости на разных этапах роста, и существуют некоторые критические значения величины угла φ_L , обозначенные как φ_L^{\min} и φ_L^{\max} , при достижении которых и происходит смена этапа роста с изотропного на огранение и обратно. На возможность нарушения условия постоянства угла роста при огранении растущего кристалла указывал еще Воронков: в [4] он приводит графики зависимостей $\varphi_S(\varphi_L)$, на которых также присутствуют разрывы и участки постоянства угла φ_S при изменении угла φ_L в некоторых пределах.

РАСЧЕТ ПРОФИЛЬНЫХ КРИВЫХ

Расчет профильных кривых менисков проводился на основе численного решения капиллярного уравнения Лапласа, записанного в безразмерном виде [8]:

$$z'' \pm 2(d - z)[1 + (z')^2]^{3/2} = 0. \quad (1)$$

Профильная кривая выражается зависимостью $z(x)$, линейные размеры выражены в капиллярных постоянных $a = (2\sigma/\rho_L g)^{1/2}$, где σ – коэффициент поверхностного натяжения расплава, ρ_L – плотность расплава, g – ускорение свободного падения, d – безразмерное давление расплава на уровне среза формообразователя ($z = 0$). За

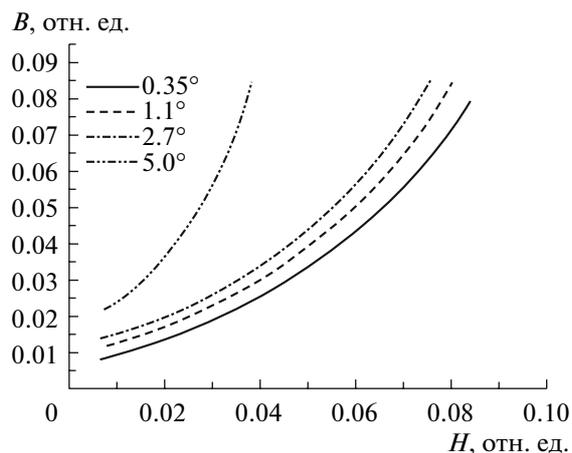


Рис. 4. Зависимости горизонтального расстояния формообразователь – кристалл (B) от высоты мениска (H) при различных значениях угла разориентации кристалла (“правая” сторона).

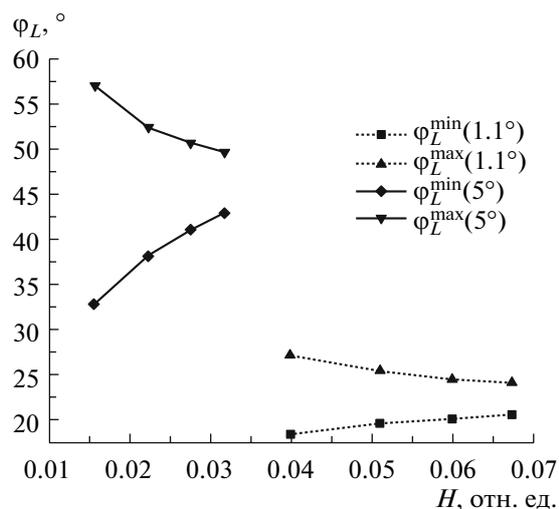


Рис. 5. Зависимость “критических” углов ϕ_L^{\min} и ϕ_L^{\max} от высоты мениска (H) для базисноограниченных лент с различным значением угла разориентации (α).

единицу давления принимается давление столба расплава высотой в одну капиллярную постоянную a .

Первое граничное условие $z(0) = 0$ выражает условие зацепления мениска за край формообразователя. Второе граничное условие может выражать условие постоянства угла роста: $z'(x_c) = \varepsilon - \pi/2$, либо условие постоянства высоты мениска: $z(x_c) = H$, где H – высота фронта кристаллизации.

Для определения значений “критических” (минимальных и максимальных) углов ϕ_L^{\min} и ϕ_L^{\max} , использовались экспериментальные данные о длинах участков ограничения и “изотропного” роста на выращенных БО-лентах с различной ориентацией.

Установлено, что в рамках предложенной модели форма боковой поверхности кристалла может быть описана для множества различных сочетаний высоты фронта кристаллизации и горизонтального расстояния между рабочей кромкой формообразователя и трехфазной линией. Эти множества значений для случаев различных углов разориентации представлены на рис. 4. Под горизонтальным расстоянием B на данном рисунке понимается максимальное расстояние по горизонтали, на котором трехфазная линия оказывается от кромки формообразователя в процессе роста (поскольку в модели предполагается, что трехфазная линия постоянно осциллирует по горизонтали при постоянной высоте над формообразователем H). Также рассчитаны зависимости “критических” углов ϕ_L^{\min} и ϕ_L^{\max} от расстояния формообразователь–кристалл для БО-лент с различной разориентацией (рис. 5).

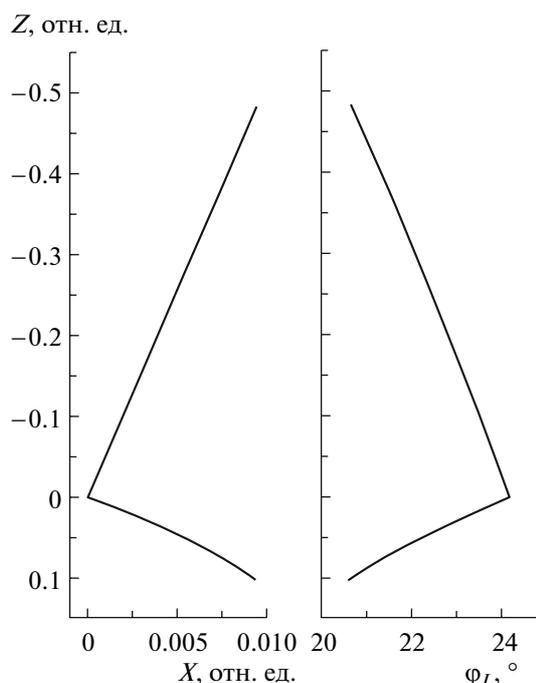


Рис. 6. Рассчитанный профиль боковой поверхности базисноограниченной ленты $X(Z)$ и изменение угла ϕ_L вдоль длины ленты (угол разориентации 1.1°).

На рис. 6 приведены также рассчитанный профиль боковой поверхности базисноограниченной ленты с углом разориентации 1.1° и изменение угла ϕ_L вдоль длины ленты. Ось Z на этом рисунке совпадает с направлением вытягивания кристалла, ось X направлена “из кристалла” (единице линейных размеров соответствует капиллярная постоянная, величина которой для сапфира 6 мм). Участок ограничения соответствует значениям Z

от -0.48 до 0 , участок изотропного роста (расширения) – от 0 до 0.10 .

Как установлено в работах [3, 9], при росте базисноограниченных сапфировых лент происходит смещение растущей ленты относительно осевой плоскости формообразователя, что связано с отклонением ориентации БО-ленты от 90° -градусной. Кроме того, размеры ступеней, образующихся в результате ограничения, на противоположных сторонах ленты различаются в десятки раз. Так, для ленты с углом разориентации $\alpha = 1.1^\circ$, средний период ступеней составляет 3.5 мм для “правой” стороны (где ограничение приводит к заужению кристалла) и 0.061 мм для “левой” стороны (где ограничение приводит к расширению кристалла).

Определить смещение ленты прямыми наблюдениями достаточно сложно. Оценка такого смещения была сделана в [3] путем выращивания специальной бикристаллической ленты, две половинки которой были разориентированы на угол 1.1° в разные стороны. Тогда, измерив смещение двух половинок лент и зная толщину формообразователя, можно оценить положение растущего кристалла относительно последнего. В [3] приведены следующие данные: при толщине ленты 1.2 мм и расстоянии между кромками формообразователя 1.72 мм ширина зазоров между поверхностью ленты и формообразователем на обеих сторонах ленты составила 0.195 и 0.325 мм, причем последнее (большее) значение соответствует “правой” стороне ленты, где происходило заужение по грани. Эти данные можно использовать для косвенной оценки адекватности модели – путем расчета высоты мениска независимо для “правой” и “левой” сторон ленты. Для правой “стороны”, согласно зависимости на рис. 4, получаем значение $H \approx 0.41$ мм. Для “левой” стороны был сделан расчет на основании из предположения о выполнении условия постоянства угла роста, что привело к результату $H \approx 0.40$ мм. Полученные близкие значения, по нашему мнению, согласуются со сделанным предположением о плоском фронте кристаллизации.

ВЫВОДЫ

Таким образом, проведенные эксперименты по выращиванию сапфировых БО-лент с различ-

ным отклонением ориентации от 90° показывают сильное влияние анизотропии поверхностной энергии на формирование структуры поверхности ленты.

Предложена модель образования ступеней на боковой поверхности БО-ленты, согласно которой, условие постоянства угла роста выполняется только на этапе роста переходного участка между двумя участками заужения кристалла по грани, в то время как при росте ограниченных участков форма профильной кривой мениска определяется только его высотой и текущим значением толщины кристалла (положением трехфазной линии). Высота мениска полагается постоянной для всех этапов роста.

На основе результатов измерения размеров ступеней, образованных на боковых поверхностях лент с различной ориентацией, проведена параметризация модели, рассчитаны формы боковых поверхностей выращенных лент, а также определены границы диапазона изменения углов наклона касательной к мениску в тройной точке.

В заключение авторы приносят глубокую благодарность П.И. Антонову, С.И. Бахолдину и Ю.Г. Носову за полезные обсуждения и советы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Антонов П.И., Крымов В.М., Носов Ю.Г., Шульпина И.Л. // Изв. РАН. Сер. физ. 2004. Т. 68. № 6. С. 777.
2. Сатункин Г.А. Исследование капиллярного формообразования при условии постоянства угла роста: Дис. ... канд. физ.-мат. наук. Черноголовка: ИФТТ, 1979.
3. Крымов В.М., Юферев В.С. // Поверхность. Рентген-, синхротр. и нейтр. исслед. 2005. № 11. С. 53.
4. Носов Ю.Г., Бахолдин С.И., Крымов В.М. и др. // См. настоящий номер журнала. С. 1429.
5. Воронков В.В. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1983. Т. 47. № 2. С. 210.
6. Воронков В.В. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1985. Т. 49. № 12. С. 2467.
7. Воронков В.В. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1988. Т. 52. № 10. С. 1874.
8. Татарченко В.А. Устойчивый рост кристаллов. М.: Наука, 1988. С. 239.
9. Куандыков Л.Л., Юферев В.С. // Изв. РАН. Сер. физ. 2004. Т. 68. № 6. С. 769.