

# Исследование оптических аномалий и остаточных напряжений в базисноограниченных ленточных кристаллах сапфира, выращенных методом Степанова

© А.В. Денисов, В.М. Крымов\*, Ю.О. Пунин

Санкт-Петербургский государственный университет,  
199003 Санкт-Петербург, Россия

\* Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: v.krymov@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 20 июня 2006 г.)

Исследованы эффекты аномальной двуосности и поля остаточных напряжений в ленточных базисноограниченных монокристаллах сапфира поляризационно-оптическим методом при коноскопическом просвечивании. Получены формулы, связывающие разность главных напряжений с углом расхождения оптических осей. Показано, что в центральных частях лент действуют напряжения сжатия, а по краям — растяжения. В блочных лентах нарастание напряжений от заправки идет значительно интенсивнее как по длине, так и по ширине ленты по сравнению с безблочными.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проекты № 03-02-17514 и 05-05-64289).

PACS: 81.10.Fq, 81.40.Jj

При выращивании ленточных кристаллов сапфира нулевой ориентации способом Степанова на поверхности лент хорошо проявляется базисная грань. При достаточно строгом совпадении геометрии ленты и ее кристаллографической ориентации можно получить полностью ограниченную с двух сторон ленту (т.е. базисноограниченную (БО) ленту). Такие ленты весьма перспективны как подложки для эпитаксии и представляют собой уникальный объект для изучения в них дислокационной структуры и остаточных напряжений в связи с условиями выращивания.

Поверхность таких лент представляет собой зеркально-гладкую базисную грань, и для исследования лент различными методами не требуется дополнительной резки, шлифовки и полировки. Кроме того, ленточные кристаллы этой ориентации весьма чувствительны к тепловым условиям выращивания, и для них в отличие от лент любых других ориентаций характерно образование блочной структуры. В [1,2] методом Степанова были выращены БО сапфировые ленты и методами избирательного химического травления и рентгеновской топографии изучено образование в них блочной и дислокационной структуры. Было показано, что в лентах только этой ориентации не проявляется легкой базисной системы скольжения, которая в лентах других ориентаций снимает возникающие термические напряжения. В базисных лентах начинает действовать более жесткая призматическая система скольжения, и в результате образуются дислокации, при перестройке которых возникают блоки, вытянутые вдоль направления вытягивания. Показано, что, целенаправленно изменяя тепловые условия выращивания, можно получать безблочные БО ленты.

Вместе с тем не исследованным остался вопрос об остаточных напряжениях, которые связаны с прошедшей во время роста пластической деформацией и образованием дислокационной и блочной структуры. БО ленты удобны для изучения остаточных напряжений поляризационно-оптическим методом, так как просвечивание идет вдоль оптической оси, в них реализуется простое двумерное распределение напряжений и не требуется никакой подготовки образцов для исследования.

Впервые эффективность поляризационно-оптического метода применительно к кристаллам сапфира, выращенным методом Вернейля, была показана в [3]. В этой работе были приведены формулы для вычисления напряжений, действующих перпендикулярно оптической оси кристалла сапфира, по данным ортоскопического или коноскопического наблюдения оптических аномалий. Приведены примеры количественных измерений напряжения. Установлено, что в сапфировых бульках имеется сжатое ядро (до 45 МПа), которое приводит к самопроизвольному растрескиванию булек вдоль оси роста.

Целью настоящей работы является исследование оптических аномалий и связанных с ними остаточных напряжений в БО лентах лейкосапфира.

## 1. Экспериментальные методики

1.1. Выращивание кристаллов. Ленточные кристаллы выращивались методом Степанова из расплава на модернизированной промышленной установке с резистивным нагревом в атмосфере аргона по обычной методике получения профилированных кристаллов лейкосапфира. Скорость вытягивания составляла 0.8 mm/min.

Использовалась осесимметричная графитовая тепловая зона с молибденовым формообразователем, позволяющим получать одновременно четыре ленты сечением  $30 \times 1.5$  mm.

Кристаллографическая ориентация затравки осуществлялась непосредственно в ростовой камере по реперным базисным граням с помощью лазера по специально разработанной методике. При этом точность ориентации относительно направления вытягивания и относительно кромок формообразователя составила несколько угловых минут. Благодаря этому удалось добиться выхода зеркальной базисной грани на обе широкие стороны ленты.

1.2. Оптические исследования. Термопластические напряжения в кристаллах средних сингоний достаточно легко исследовать поляризационно-оптическим методом в разрезах, перпендикулярных оси  $Z$ , в сходящемся поляризованном свете (метод коноскопии). Кристаллы средней сингонии в идеальных условиях являются одноосными, но под действием напряжений приобретают аномальную двусность. Величина расхождения изогир (угол  $2V$ ) характеризует максимальные скалывающие напряжения (разность квазиглавных напряжений) в срезе, а ориентировка плоскостей оптических осей (РОА) — траектории квазиглавных нормальных напряжений.

Коноскопические картины наблюдались с помощью поляризационного микроскопа МП-2, с шестикратным окуляром с микрометрической линейкой и двадцатикратным объективом. Распределение аномальной двусности по площади пластин изучалось по сетке со сторонами  $2 \times 4$  mm. Используя методику, описанную в [4], в каждой точке сетки измеряли величину максимального расхождения изогир ( $D$ ) и угол наклона РОА к продольной оси пластины ( $\gamma$ ) (рис. 1). Значительная толщина пластин (1.5 mm) обеспечивала при этом достаточную четкость коноскопической фигуры. Угол  $2V$  вычисляли далее по формуле

$$\sin V = KD/n_m, \quad (1)$$

где  $K$  — коэффициент, характеризующий оптическую систему микроскопа (коноскопический угол объектива, цена деления окуляр-микрометра и т.д.),  $n_m \cong n_0 = 1.7771$  — показатель преломления для  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Коэффициент  $K$  определяли по измерению эталонного образца фторфлогопита ( $n_m = 1.555$ ,  $V = 8^\circ$ ,  $D = 37$  малых делений окуляр-микрометра).

## 2. Расчет остаточных напряжений по результатам оптических измерений

Рассмотрим задачу расчета внутренних напряжений в ленточных кристаллах лейкосапфира нулевой ориентации (базисной) по данным оптических измерений аномальной двусности.

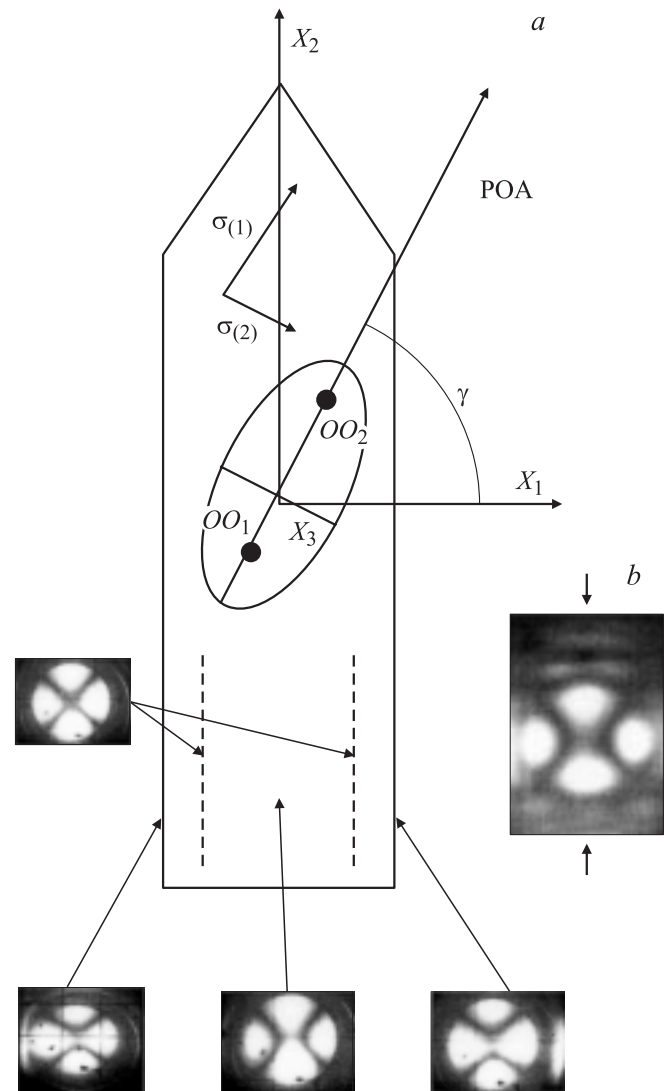


Рис. 1. *a* — схема ориентации кристаллофизических осей относительно геометрии ленты. Показано сечение оптического эллипсоида плоскостью ленты. Плоскость оптических осей (РОА) перпендикулярна плоскости ленты и составляет угол  $\gamma$  с осью  $X_1$ .  $OO_1$  и  $OO_2$  — проекции на плоскость рисунка точек пересечения оптических осей с поверхностью эллипсоида. Внизу показаны фотографии коноскопических фигур на различных участках по ширине ленты. *b* — вид коноскопической фигуры при сжатии сапфирового стержня.

Лейкосапфир относится к тригональной сингонии, кристаллографический класс  $\bar{3}m$ . Кристаллографическая ориентация ленты: плоскость ленты совпадает с базисной плоскостью (0001), направление выращивания  $[01\bar{1}0]$  (рис. 1).

Напряжения в ленте рассчитывались в кристаллофизической системе координат ( $X_1, X_2, X_3$ ): ось  $X_3$  — перпендикулярна плоскости ленты, параллельна оси  $L_{i3}$  — инверсионной оси третьего порядка и совпадает с направлением просвечивания (рис. 1), ось  $X_2$  — в направлении выращивания  $[01\bar{1}0]$  в плоскости ленты, ось  $X_1$  —

в плоскости ленты перпендикулярно ее боковой стороне (ось симметрии второго порядка).

Если внутренние напряжения отсутствуют, то оптическая индикатриса представляет собой эллипсоид вращения, и при просвечивании вдоль оптической оси двулучепреломление и двуосность отсутствуют. В лентах с остаточными напряжениями эллипсоид становится трехосным, кристалл имеет две оптические оси:  $OO_1$  и  $OO_2$  (рис. 1), острый угол между которыми равен  $2V$ .

Тангенс половины угла между оптическими осями можно выразить через компоненты  $\xi_m$  двумерного тензора добавки к исходному тензору диэлектрической непроницаемости [5]

$$\operatorname{tg} V = \frac{\sqrt[4]{(\xi_1 - \xi_2)^2 + (2\xi_6)^2}}{\sqrt{n_e^{-2} - n_0^{-2}}}, \quad (2)$$

где  $n_0$  и  $n_e$  — показатели преломления для обыкновенной и необыкновенной волны, ненапряженного кристалла  $Al_2O_3$ .

Угол наклона  $\gamma$  РОА к оси  $X_2$  также определяется через эти компоненты

$$\operatorname{tg} 2\gamma = 2 \frac{\xi_6}{\xi_1 - \xi_2}. \quad (3)$$

Поскольку рассматриваемая лента достаточно тонкая, т.е. отношение ширины ленты к толщине  $b/h = 20 \gg 1$ , можно принять, что лента находится в плосконапряженном состоянии. Это означает, что все напряжения, нормальные к плоскости ленты, равны нулю, и в тензоре напряжений остается только три компоненты:  $\sigma_{11}$ ,  $\sigma_{22}$ ,  $\sigma_{12}$  или в матричных обозначениях  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$ ,  $\sigma_6$ .

Согласно теории пьезооптического эффекта [5], изменение диэлектрической непроницаемости под действием механических напряжений можно записать (в матричных обозначениях)

$$\xi_m = \pi_{mn}^* \sigma_n, \quad (4)$$

где  $\pi_{mn}$  — тензор пьезооптических коэффициентов. Его вид для класса  $\bar{3}m$  приведен в [5].

Для нашего случая достаточно рассмотреть сечение оптической индикатрисы, перпендикулярное направлению просвечивания, т.е. найти компоненты двумерного тензора изменения диэлектрической непроницаемости

$$\begin{aligned} \xi_1 &= \pi_{11}\sigma_1 + \pi_{12}\sigma_2, \\ \xi_2 &= \pi_{12}\sigma_1 + \pi_{11}\sigma_2, \\ \xi_6 &= (\pi_{11} - \pi_{12})\sigma_6. \end{aligned} \quad (5)$$

Решая систему (5), рассчитываем разность компонент напряжений  $(\sigma_1 - \sigma_2)$  и компоненту  $(\sigma_6)$

$$\sigma_1 - \sigma_2 = \frac{\xi_1 - \xi_2}{\pi_{11} - \pi_{12}} = \frac{n_0^{-2} - n_e^{-2}}{\pi_{11} - \pi_{12}} \operatorname{tg}^2 V \cos 2\gamma, \quad (6)$$

$$\sigma_6 = \frac{\xi_6}{\pi_{11} - \pi_{12}} = \frac{n_0^{-2} - n_e^{-2}}{2(\pi_{11} - \pi_{12})} \operatorname{tg}^2 V \sin 2\gamma. \quad (7)$$

Далее высчитываем разность главных напряжений  $(\sigma_{(1)} - \sigma_{(2)})$  и угол наклона траекторий главных напряжений  $(\psi)$  к оси  $X_1$

$$\begin{aligned} \sigma_{(1)} - \sigma_{(2)} &= \sqrt{(\sigma_1 - \sigma_2)^2 + 4\sigma_6^2} \\ &= \frac{\operatorname{tg}^2 V (n_0^{-2} - n_e^{-2})}{\pi_{11} - \pi_{21}}, \end{aligned} \quad (8)$$

$$\operatorname{tg} 2\psi = \frac{2\sigma_6}{\sigma_1 - \sigma_2} = \frac{2\xi_6}{\xi_1 - \xi_2} = \operatorname{tg} 2\gamma, \quad \text{т.е. } \psi = \gamma. \quad (9)$$

Следовательно, оси осечения оптической индикатрисы и эллипса напряжений совпадают. Таким образом, экспериментально измеренные значения  $2V$  позволяют найти максимальные скалывающие напряжения  $2\tau_{\max} = (\sigma_{(1)} - \sigma_{(2)})$ , а направления действия главных напряжений в данном сечении  $\psi$  определяются углами наклона РОА и нормали к ней.

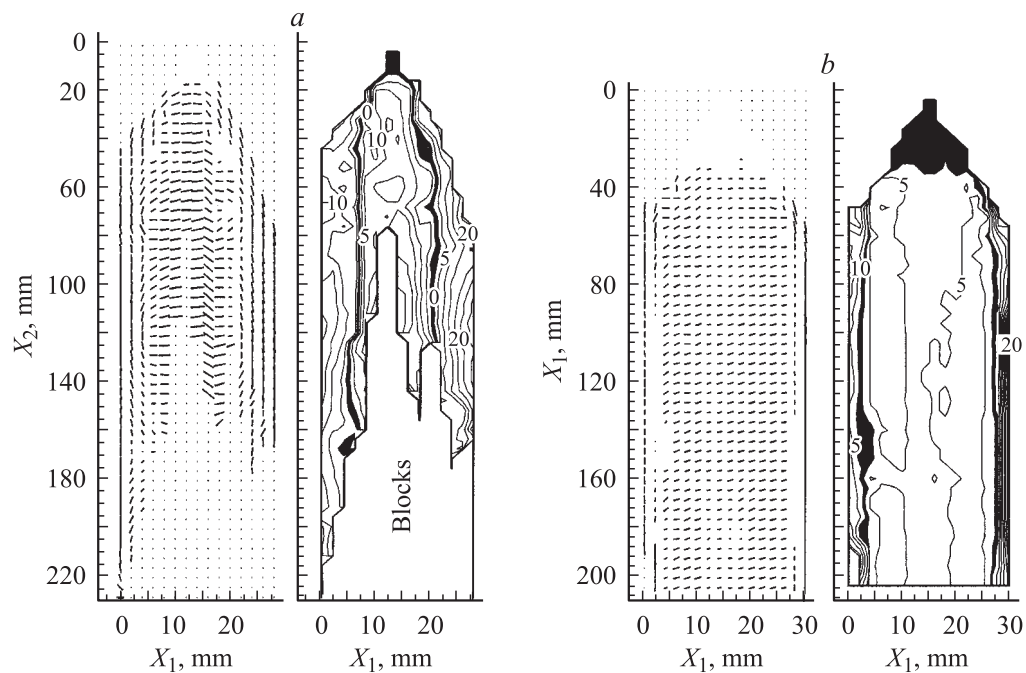
Как показано в [6], формулы (8) и (9) имеют общий характер для разрезов, перпендикулярных оптической оси, в кристаллах гексагональной и тригональной сингоний. Заметим, что в [3] аналогичная формула для разности главных напряжений несколько отличается от формулы (8), т.е. вместо тангенса используется синус угла  $V$ , что эквивалентно лишь для малых углов.

### 3. Экспериментальные результаты и обсуждение

Для исследования были выбраны две БО ленты, сечением  $30 \times 1.5$  mm. Первая выращена в обычной тепловой зоне. Характерной особенностью структуры ленты является то, что на расстоянии 80 mm от затравки начинается зарождение и развитие блоков. Вторая лента, безблочная, выращена с тем же формообразователем, но с измененной тепловой экранировкой.

На рис. 1, а приведены фотографии коноскопических фигур в характерных местах по ширине ленты (по краям, в центре и в областях нулевого двулучепреломления), а на рис. 2 — картины положения траекторий и распределения разности главных напряжений в лентах. Следует учесть, что в первой ленте удалось измерить начальную часть ленты, где нет блоков. Во второй ленте также измерена начальная часть ленты длиной 200 mm.

Видно, что в целом распределение как траектории главных напряжений, так и величины их разности одинаково для обеих лент. На краях лент траектория главных напряжений параллельна направлению выращивания, а в центральных областях приблизительно перпендикулярна этому направлению. Разности главных напряжений максимальны на краях и в центре и есть нулевые области, в которых аномальная двуосность и напряжения отсутствуют.



**Рис. 2.** Положения траекторий (слева) и распределение скалывающих напряжений (справа) в лентах сапфира с блоками (а) и без блоков (b).

Такой характер распределения главных напряжений позволяет предположить, что в измеренных частях лент действует в основном осевое напряжение  $\sigma_2$ , направленное вдоль оси выращивания (исходя из граничных условий напряжение  $\sigma_1$  равно нулю на краях ленты). Распределение осевого напряжения  $\sigma_2$  по ширине лент на разных расстояниях от затравки показано на рис. 3. Видно, что в центре ленты действуют напряжения сжатия, а по краям ленты — растяжения. Этот вывод подтверждается тем, что при одноосном сжатии сапфирового стержня, выращенного в направлении „Ag“, коноскопическая картина расхождения изогир идентична картине в средней части ленты. Полученный результат также совпадает с выводами работы [3], где было показано, что в центре сапфировой булочки, выращенной методом Вернейля, действуют напряжения осевого сжатия, а на периферии — растяжения. Такое распределение остаточных напряжений характерно для жестких кристаллов (с узкой температурной зоной пластичности), наращиваемых с торца [7]. В то же время картина остаточных напряжений в пластинах сапфира, выращенных методом горизонтальной направленной кристаллизации, имеет обратный характер [8].

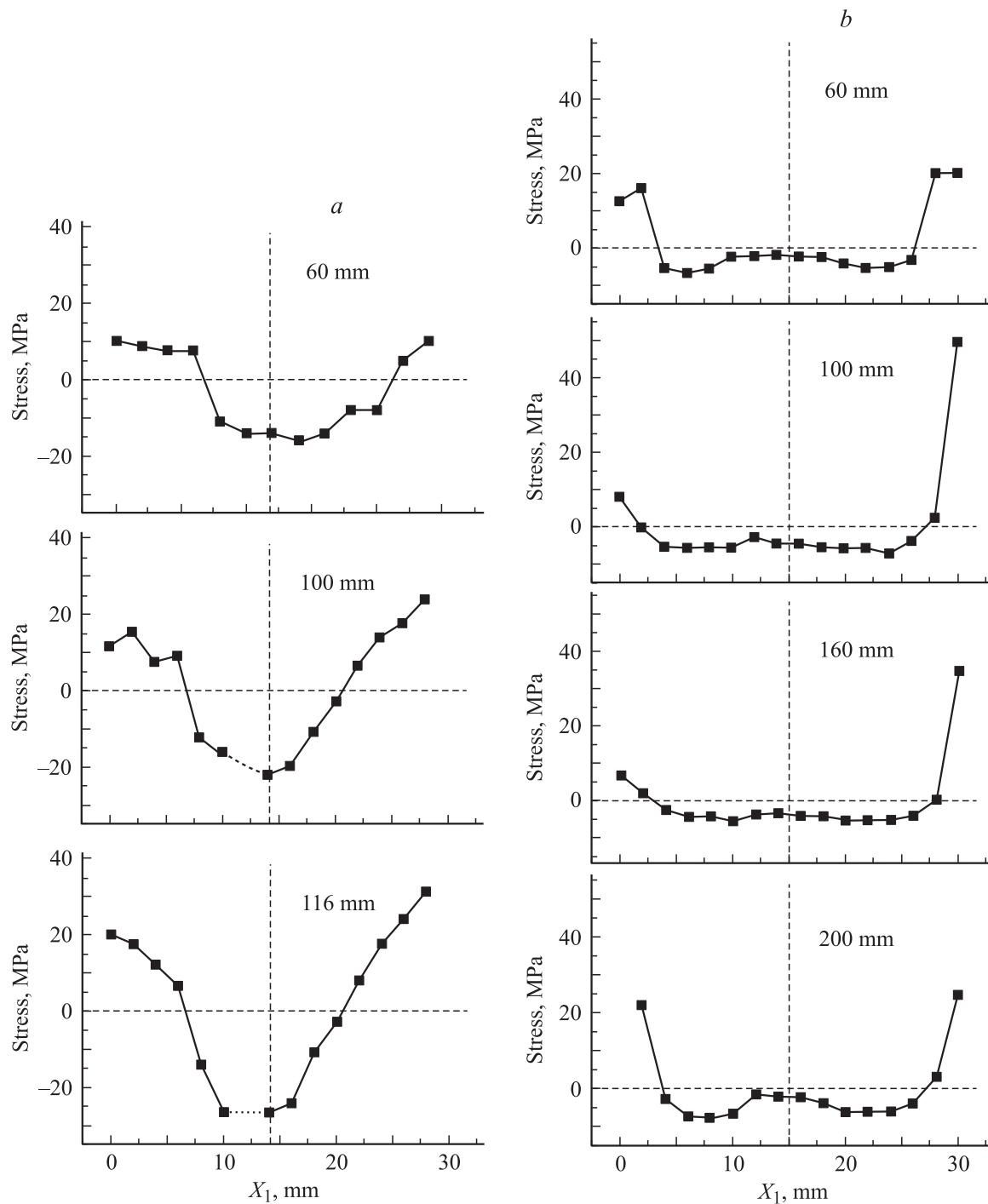
Отличие двух исследованных лент состоит в том, что в ленте с блочной структурой идет более быстрое нарастание напряжений в направлении разрашивания, и по мере удаления от затравки (рис. 4). Видно, что на расстоянии 116 мм от затравки скалывающие напряжения достигают 25 МПа, что, по-видимому, является критическим напряжением пластической деформации, так как в этом месте начинают образовываться блоки.

Отметим для сравнения, что предел прочности сапфира на растяжение при комнатной температуре составляет 275–895 МПа [8]. В то же время уровень напряжений в средней части безблочной ленты не превышает 5 МПа на всей ее длине. Несколько отличается и распределение напряжений по ширине лент. Области нулевых напряжений в ленте без блоков лежат гораздо ближе к краям ленты. При этом между нейтральными линиями напряжения в безблочной ленте практически постоянны, и быстрый рост напряжений наблюдается лишь в краевых частях ленты. В блочной ленте имеет место примерно параболическое распределение напряжений по ширине. Такие различия обусловлены разными тепловыми условиями выращивания, в частности меньшей кривизной температурного поля при росте безблочной ленты.

Сопоставление уровня и распределения остаточных напряжений в двух исследованных лентах, выращенных при разной тепловой экранировке, дает указания на причины образования макроблочности в базисных корундовых лентах.

В целом можно отметить, что полученная картина полей остаточных напряжений коррелирует с распределением плотности дислокаций в лентах и безусловно связана с пластической деформацией и образованием и движением дислокаций в процессе выращивания кристалла.

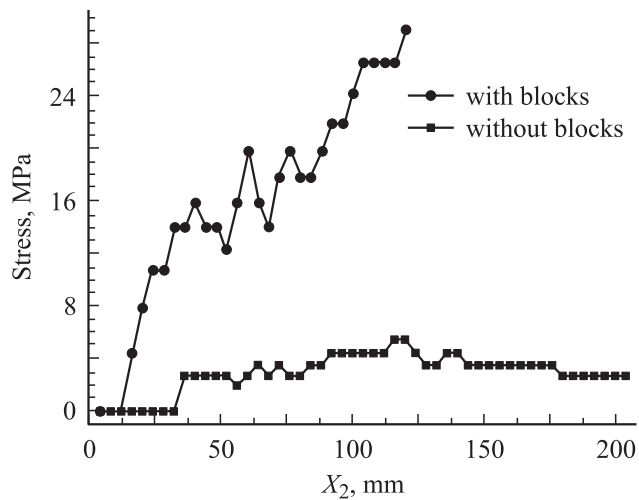
Принято считать, что определяемые на выращиваемых кристаллах остаточные (термопластические) напряжения обратны по знаку исходным термоупругим напряжениям в растущем кристалле. Однако сопоставление измеренных остаточных напряжений и расчетных тер-



**Рис. 3.** Распределение напряжений  $\sigma_2$  по ширине лент с блоками (а) и без блоков (б) на различных расстояниях (показаны на правых частях рисунка в mm) от затравки.

моупругих дает более сложную картину. Пластическая деформация при выращивании вероятнее всего проходит в области максимальных температур; как показывают расчеты термоупругих напряжений [9], вблизи фронта кристаллизации могут действовать три компонента тензора напряжения: в узкой области и на самом фронте отрицательные  $\sigma_1$  и несколько выше осевые напряжения,  $\sigma_2$  положительные в центре ленты и отрицательные по

краям. Кроме них действуют еще касательные компоненты. Учет знаков напряжения, действующих в призматической системе скольжения (базисная система не работает), также не дает однозначного соответствия [9]. Что касается величины термоупругих напряжений, то они могли быть и больше экспериментально найденных термопластических напряжений, если во время выращивания не произошло полной пластической релаксации.



**Рис. 4.** Распределение напряжений  $\sigma_2$  по длине лент с блоками и без блоков.

В любом случае в осевой части блочной ленты термоупругие напряжения существенно превышали таковые в безблочной ленте. Интересно, что у безблочной ленты напряжения на одном ее крае достигают даже больших значений (50 МПа), но это не приводит к образованию блоков. Можно предположить, что пластическая деформация с образованием дислокаций на краю ленты проходит в области максимумов термоупругих напряжений  $\sigma_2$ , т. е. в более холодной области выше фронта и где критические напряжения образования дислокаций выше.

Таким образом, можно утверждать, что образование блоков происходит при выращивании лент при достаточно высоких степенях пластической деформации. Сами блоки представляют собой узкие, клинообразные области, расходящиеся веерообразно, как правило, из центральных областей кристалла [1]. Блоки разориентированы на несколько градусов в плоскости, перпендикулярной направлению выращивания. Плотность дислокаций в соседних блоках может отличаться на два порядка. Можно предположить, что в условиях высокого уровня термоупругих напряжений в ее осевой части, а также высоких градиентов напряжений, дающих макроскопические моменты, может иметь место ротационная пластическая деформация с образованием дефектов типа дисклинаций [10]. В результате микроскопические области разворачиваются относительно плоскости ленты и при дальнейшем выращивании наследуются, образуя веерообразную систему разориентированных блоков.

Таким образом, найденные распределения остаточных напряжений в БО блочных и безблочных сапфировых лентах качественно согласуются как с тепловыми условиями их выращивания, так и с вероятностью блокообразования.

Картина остаточных напряжений коррелирует с распределением плотности дислокаций в лентах и отражает процессы пластической деформации под действием термических напряжений при выращивании лент. Можно

предположить, что образование и развитие блочной структуры идет по дисклинационному механизму.

Разработанный метод определения остаточных напряжений может быть рекомендован как метод неразрушающего контроля качества при производстве БО лент сапфира.

## Список литературы

- [1] П.И. Антонов, В.М. Крымов, Ю.Г. Носов, И.Л. Шульпина. Изв. РАН. Сер. физ. **68**, 777 (2004).
- [2] Л.Л. Куандыков, С.И. Бахолдин, И.Л. Шульпина, П.И. Антонов. Изв. РАН. Сер. физ. **68**, 784 (2004).
- [3] В.Л. Инденбом, Г.Е. Томиловский. Кристаллография **3**, 594 (1958).
- [4] А.В. Денисов, Ю.О. Пунин, А.Г. Штукенберг, О.С. Грунский. Вестн. СПбГУ Сер. 7.1.106 (2006).
- [5] Ю.И. Сиротин, М.П. Шаскольская. Основы кристаллофизики. Наука, М. (1979). 640 с.
- [6] А.Г. Штукенберг, Ю.О. Пунин. Оптические аномалии в кристаллах. Наука, СПб (2004). 280 с.
- [7] В.Л. Инденбом, И.С. Житомирский, Т.С. Чебанова. В сб.: Рост кристаллов / Под ред. Н.Н. Шефталы. Наука, М. (1968). С. 303.
- [8] Е.Р. Добровинская, Л.А. Литвинов, В.В. Пищик. Энциклопедия сапфира. НТК „Институт монокристаллов“. Харьков (2004). 508 с.
- [9] С.И. Бахолдин, Е.В. Галактионов, В.М. Крымов. Изв. РАН. Сер. физ. **63**, 1816 (1999).
- [10] В.И. Владимиров, А.Е. Романов. Дисклинации в кристаллах. Наука, Л. (1986). 224 с.