# Модель идеальной релаксации термоупругих напряжений при выращивании монокристаллов

© Ш.Х. Ханнанов, С.П. Никаноров*, С.И. Бахолдин*

Институт физики молекул и кристаллов Уфимского научного центра Российской академии наук,
450075 Уфа, Россия
E-mail: imep@anrb.ru

* Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия
E-mail: nikanorov@pop.ioffe.rssi. ru

(Поступила в Редакцию 25 сентября 2002 г.)

Предложена простая дислокационная модель релаксации термоупругих напряжений, возникающих при выращивании монокристаллов из расплава. Данная модель не требует решения кинетических уравнений для дислокаций, участвующих в процессе релаксации, и позволяет получить оценку снизу плотности дислокаций в объеме выращенного кристалла.

Одной из актуальных задач физики твердого тела является выращивание совершенных (бездислокационных) монокристаллов различной формы и назначения [1,2]. Речь пойдет о монокристаллах, выращиваемых из расплава, в которых дислокации могут возникать под действием термоупругих напряжений [1–3]. При этом дислокации играют роль носителей пластической деформации, посредством которой осуществляется релаксация. Для сознательного управления совершенством монокристаллов важно установить зависимость плотности дислокаций $\rho$ от основных физических факторов, в частности от характера температурного поля $T(\mathbf{r})$. Последовательное рассмотрение требует самосогласованного решения задачи, включающей уравнения для определения температурного поля $T(\mathbf{r})$, термоупругих напряжений $\sigma_{ik}(\mathbf{r})$ и функций распределения дислокаций $f^q(\mathbf{r},t)$ в различных системах скольжения $q$. Такая задача сложна, трудоемка и связана с громоздкими численными расчетами. Упруго-пластическая задача остается весьма сложной даже в рамках макроскопического описания (см., например, [4]).

В связи с этим, начиная с первых работ по образованию дислокаций при выращивании монокристаллов, неоднократно предпринимались попытки получения приближенных оценок плотности дислокаций по частичным характеристикам температурного поля, таким как первые и вторые производные в направлении выращивания (т.е. вдоль оси кристалла) или в радиальном направлении. Они строились в предположении, что образующиеся дислокации полностью компенсируют температурный изгиб кристалла, вызванный неоднородностью распределения температуры вдоль одной из осей (см. работы [5–7]). В некоторых случаях эти оценки давали удовлетворительные результаты.

Наряду с этим на практике превалировал подход, основанный не на анализе кривизны кристаллической решетки, а на анализе термоупругих напряжений. Поскольку источником кривизны решетки и термоупругих напряжений являются некомпенсированные дислокации, представляется возможным развитие модели, объединяющей оба указанных подхода. Такая модель должна строиться путем более точного разделения различных частей некомпенсированных дислокаций по характеру их влияния на состояние кристалла. Настоящая работа предпринята именно с этой целью. В ней предлагается модель идеальной релаксации термоупругих напряжений (МИРТН), справедливая при некоторых физических предположениях и позволяющая получить оценку снизу для плотности дислокаций $\rho$ без решения кинетических уравнений относительно функции распределения дислокаций $f^q(\mathbf{r},t)$.

## 1. Формулировка и физическое обоснование МИРТН

Рассмотрим монокристалл, в объеме $V$ которого поддерживается неоднородное распределение температуры $T(\mathbf{r})$. Вырежем мысленно из объема $V$ физический малый объем $\delta V$, сохраняя неизменной температуру $T(\mathbf{r})$ в точке $\mathbf{r}$ (центре объема $\delta V$). Тогда объем $\delta V$ испытывает свободное от стеснения термическое расширение (дисторсию) $u_{ik}(\mathbf{r})$

$$u_{ik}(\mathbf{r}) = \chi T(\mathbf{r})\delta_{ik}, \tag{1}$$

где $\delta_{ik}$ — символ Кронекера, $\chi$ — коэффициент температурного расширения. Здесь для простоты температурное расширение предполагается изотропным. Дисторсии $u_{ik}(\mathbf{r})$ могут быть несовместными (нас интересует именно такой случай) и вызывать термоупругие напряжения $\sigma_{ik}(\mathbf{r})$. Источником внутренних напряжений являются также дислокации, при этом в континуальной теории напряжения $\sigma_{mn}$ определяются непосредственно тензором плотности дислокаций $\alpha_{pl}$ [8–10]. Исходя из этого, несовместные термические дисторсии $u_{ik}(\mathbf{r})$ (1) можно заменить эквивалентным (вызывающим те же упругие напряжения) тензором плотности фиктивных дислокаций $\alpha_{pl}^{F}$

$$\alpha_{pl}^{F} = -E_{pmk}u_{kl,m} = E_{pml}(\chi T_{,m}), \tag{2}$$

где $E_{pmk}$ — единичный антисимметричный тензор, а индекс после запятой означает операцию дифференцирования по соответствующей координате. Здесь при переходе ко второму равенству использовано уравнение (1). В общем случае плотность фиктивных дислокаций $\alpha_{pl}^{F}$ состоит из активной $\alpha_{pl}^{F(1)}$ и неактивной $\alpha_{pl}^{F(2)}$ частей. Неактивная часть в отличие от активной не создает внутренних упругих напряжений $\sigma_{mn}$ и может быть отброшена. Пока будем предполагать, что $\alpha_{pl}^{F(2)} = 0$ и $\alpha_{pl}^{F} = \alpha_{pl}^{F(1)}$, т.е. $\alpha_{pl}^{F}$ целиком состоит из активной части. Изменения, связанные с наличием $\alpha_{pl}^{F(2)} \neq 0$, рассмотрим в конце статьи.

Далее рассуждадем слудующим образом. Процесс релаксации термоупругих напряжений, осуществляемый путем зарождения и движения реальных (решеточных) дислокаций, можно рассматривать как релаксацию напряжений, создаваемых фиктивными дислокациями, тензор плотности которых $\alpha_{pl}^{F}$ определяется (2). Будем считать, что релаксация происходит до конца (это одно из предположений МИРТН), т.е. термоупругие напряжения $\sigma_{ik}(\mathbf{r})$ полностью устраняются. Для этого тензор плотности реальных (решеточных) дислокаций $\alpha_{pl}^{R}$ должен в точности компенсировать тензор плотности фиктивных дислокаций $\alpha_{pl}^{F}$. Иными словами, в любой точке $\mathbf{r} \in V$ должно выполняться равенство

$$\alpha_{pl}^{F} + \alpha_{pl}^{R} = 0. \tag{3}$$

Поскольку рост кристаллов из расплава происходит очень медленно и при предплавильных температурах, предположение о полной релаксации термоупругих напряжений (3), по-видимому, выполняется достаточно хорошо в реальных условиях (фактически достаточно выполнения (3) вблизи фронта кристаллизации, где термоупругие напряжения и подвижность дислокаций высокие).

Равенство (3) позволяет найти тензор плотности решеточных дислокаций

$$\alpha_{pl}^{R}(\mathbf{r}) = -\alpha_{pl}^{F}(\mathbf{r}), \tag{4}$$

или, подставляя сюда выражение (2), находим

$$\alpha_{pl}^{R} = -E_{pml}(\chi T_{,m}). \tag{5}$$

Итак, мы получили формулу (5), определяющую тензор плотности решеточных дислокаций $\alpha_{pl}^{R}$, необходимых для идеальной (полной) релаксации термоупругих напряжений, связанных с заданным температурным полем $T(\mathbf{r})$ в монокристалле. При этом нам не пришлось решать кинетические уравнения относительно функций распределения решеточных дислокаций $f^{q}(\mathbf{r}, t)$.

Однако тензор плотности $\alpha_{pl}^{R}$ не содержит в себе полную информацию о распределенных в объеме $V$ дислокациях. Кроме того, экспериментаторы предпочитают иметь дело с так называемой скалярной плотностью дислокаций $\rho$. Поэтому дальнейшая задача состоит в том, чтобы определить связь между $\rho$ и $\alpha_{pl}^{R}$. Такая связь может быть получена, если известны относительные плотности (вклады) дислокаций различных систем скольжения $q$.

Тензор плотности реальных дисклокаций $\alpha_{pl}^{R}$ определяется через функцию распределения $f^{q}(\mathbf{r}, t)$ соотношением [9]

$$\alpha_{pl}^{R} = \sum_{q} \tau_{p}^{q} b_{l}^{q} f^{q}, \tag{6}$$

где $\boldsymbol{\tau}^{q}$ — единичный вектор касательной к линии дислокации, $\mathbf{b}^{q}$ — вектор Бюргерса дислокации; суммирование в (6) производится по всем сортам дислокаций $q$. Для скалярной плотности дислокаций $\rho$ имеем

$$\rho = \sum_{q} f^{q}. \tag{7}$$

Как видно из (6), (7), прямой связи между $\alpha_{pl}^{R}$ и $\rho$ действительно не существует, поскольку эти величины выражаются через различные моменты, описываемые функцией $f^{q}(\mathbf{r}, t)$, которая неизвестна. Для получения приближенных оценок $\rho$ можно использовать разумные предположения о ее виде. В общем случае эта функция состоит из двух слагаемых $f_{1}^{q}$ и $f_{2}^{q}$

$$f^{q}(\mathbf{r}, t) = f_{1}^{q} + f_{2}^{q}, \tag{8}$$

где $f_{1}^{q}$ соответствует некомпенсированным дислокациям, а $f_{2}^{q}$ — компенсированным. Компенсированная часть дислокаций по определению содержит дислокации разного знака в равном количестве и не вносит вклада в $\alpha_{pl}^{R}$. С учетом этого из (6), (8) имеем

$$\alpha_{pl}^{R} = \sum_{q} \tau_{p}^{q} b_{l}^{q} f_{1}^{q}. \tag{9}$$

Скалярная плотность дислокаций не зависит от знака дисклокаций, поэтому вклад в $\rho$ вносят обе части $f_{1}^{q}$ и $f_{2}^{q}$, т.е. согласно (7), (8) имеем

$$\rho = \rho_1 + \rho_2 \equiv \sum_{q} f_{1}^{q} + \sum_{q} f_{2}^{q}. \tag{10}$$

В предложенной здесь МИРТН будем предполагать, что $f_{2}^{q} = 0$, следовательно,

$$\rho = \rho_1 \equiv \sum_{q} f_{1}^{q}. \tag{11}$$

Для замыкания соотношений (9), (11) примем упрощающее предположение, что в каждую компоненту тензора $\alpha_{pl}^{R}$ (9) вносят вклад дислокации только одного сорта: индесам $p, l$ отвечает единственный сорт дислокаций $q(pl)$. Тогда из (9) находим

$$f_{1}^{q} = \left(\tau_{p}^{q} b_{l}^{q}\right)^{-1} \alpha_{pl}^{R} \tag{12}$$

и, подставляя (12) в (11), получаем для $\rho_1$

$$\rho_1 = \sum_{pl} \left(\tau_p^q b_l^q\right)^{-1} \alpha_{pl}^R, \tag{13}$$

где $q = q(pl)$ — сорт дислокаций, определяемый индексами $p, l$. Следует сказать, что могут быть и другие способы получения $f_1^q$, например с использованием экспериментальных данных об относительном вкладе различных систем скольжения в тензор $\alpha_{pl}^R$.

Все полученные выше результаты теоретического рассмотрения справедливы при выполнении исходного предположения о том, что $\alpha_{pl}^F = \alpha_{pl}^{F(1)}$ и $\alpha_{pl}^{F(2)} = 0$ (см. разд. 1). Когда указанное предположение не выполняется, изложенная схема должна быть соответствующим образом видеоизменена: в формулах (3), (4) следует $\alpha_{pl}^F$ заменить на $\alpha_{pl}^{F(1)}$, а в формуле (5) следует температуру $T(\mathbf{r})$ заменить на $T^{(1)}(\mathbf{r})$. Здесь $\alpha_{pl}^{F(1)}$, $T^{(1)}(\mathbf{r})$ определяются соотношениями

$$\alpha_{pl}^{F(1)} = E_{pml}(\chi T_{,m}^{(1)}), \tag{14}$$

$$T^{(1)} = T - T^{(2)}, \tag{15}$$

где $T^{(2)}(\mathbf{r})$ — распределение температуры, не вызывающее упругие напряжения $\sigma_{mn}$ в кристалле. Теперь все сводится к нахождению $T^{(2)}(\mathbf{r})$, соответствующей реальной ситуации.

Для определения вида функции $T^{(2)}(\mathbf{r})$ обратимся к условиям совместности деформаций $(p, q = x, y, z)$

$$\eta_{pq} = 0, \tag{16}$$

где симметричный тензор несовместности $\eta_{pq}$ в случае термических деформаций (1) может быть выражен через производные температуры $T(\mathbf{r})$

$$\eta_{pq} = \eta_{pq}(T) = \chi(T_{,mm}\delta_{pq} - T_{,pq}). \tag{17}$$

По определению $\eta_{pq}(T^{(2)}) = 0$ или с учетом (17) это условие запишется в виде

$$T_{,mm}^{(2)}\delta_{pq} - T_{,pq}^{(2)} = 0. \tag{18}$$

Решением системы дифференциальных уравнений второго порядка (18) является любая линейная функция

$$T^{(2)}(x, y, z) = ax + by + cz + d, \tag{19}$$

где $a, b, c, d$ — произвольные коэффициенты. Таким образом, условия совместности (18) не позволяют найти $T^{(2)}$ однозначным образом. Поэтому требуются дополнительные физические условия. В рамках данной МИРТН естественно потребовать, чтобы $T^{(2)}(\mathbf{r})$ удовлетворяла условию минимума интегральной скалярной плотности дислокаций $R$

$$\frac{\delta R}{\delta T^{(2)}} = 0, \tag{20}$$

где $R$ — функционал от $T^{(2)}(\mathbf{r})$

$$R\left[T^{(2)}(\mathbf{r})\right] = \int\limits_V \rho_1 \left[T^2(\mathbf{r}')\right] d\mathbf{r}'. \tag{21}$$

Здесь $\delta R/\delta T^{(2)}$ — вариационная производная, $V$ — объем кристалла.

Рассмотрим одномерную задачу, когда температура $T(z)$ зависит от одной переменной $z$. Приблизительно такая ситуация возникает при выращивании монокристаллов из расплава. Пусть кристалл занимает область $z_1 \le z \le z_2$ и температура $T(z)$ удовлетворяет граничным условиям: $T(z_1) = T_1$, $T(z_2) = T_2$. При $T = T(z)$ система уравнений (18) сводится к одному уравнению

$$T_{,zz}^{(2)} = 0 \tag{22}$$

и общим его решением является линейная функция

$$T^{(2)} = kz + c, \tag{23}$$

где $k, c$ — произвольные коэффициенты. Подставляя (23) в (15), находим $T^{(1)}$. Затем, заменяя в (5) $T$ на $T^{(1)}$, получаем для отличных от нуля компонент тензора плотности реальных дислокаций $\alpha_{kl}^R$

$$\alpha_{12}^R = -\alpha_{21}^R = \chi(\partial T/\partial z - k). \tag{24}$$

Тензор плотности дислокаций вида (24) допускает представление квадратной сеткой краевых дислокаций в плоскости $xy$, нормальной оси $z$. Используя такое представление и формулы (13), (24), получаем для $\rho_1$

$$\rho_1 = 2/b\,\chi\,\left|\partial T/\partial z - k\right|, \tag{25}$$

где $b$ — величина вектора Бюргерса краевых дислокаций. Знак абсолютной величины в (25) возникает в силу того, что множитель $(\tau_p b_l)^{-1}$ в (13) имеет знак, зависящий от знака $(\partial T/\partial z - k)$. При этом формула (25) инвариантна относительно преобразования инверсии системы координат $(z' = -z)$. Подставляя (25) в (21), находим выражение для функционала $R$ интегральной скалярной плотности дислокаций

$$R = \left(2/b\,\chi\,S\right) \int\limits_{z_1}^{z_2} |T_{,z}(z') - k|\, dz', \tag{26}$$

где $S$ — площадь поперечного сечения кристалла. При заданном температурном поле $T(z)$ функционал $R$ зависит от неизвестной константы $k$, которая входит в общее выражение для $T^{(2)}(z)$ (23). С учетом этого условие минимума (20) сводится к уравнению относительно $k$

$$d/dk\left\{\int\limits_{z_1}^{z_2} \left|T_{,z}(z') - k\right| dz'\right\} = 0. \tag{27}$$

Рассмотрим линейное температурное поле

$$T(z) \equiv \tilde{T}(z) = T_1 + k_0(z - z_1),$$
$$k_0 = (T_2 - T_1)/(z_2 - z_1), \quad (28)$$

удовлетворяющее граничным условиям: $T(z_1) = T_1$, $T(z_2) = T_2$. В этом случае, как нетрудно видеть, минимуму $R$ отвечает

$$k = k_0. \quad (29)$$

При этом интегральная скалярная плотность дислокаций $R = 0$. Таким образом, линейное температурное поле вида (28) является идеальным с точки зрения выращивания бездислокационных кристаллов.

Когда $T(z)$ отличаетися от $\tilde{T}(z)$ на малую величину $\delta T$,

$$T(z) = \tilde{T}(z) + \delta T(z), \quad (30)$$

как следует из рассмотренного выше случая, значение $k$ будет мало отличаться от $k_0$, так что

$$k \approx k_0 \quad (31)$$

и с учетом (25)

$$\rho_1 \approx \big(2/b\chi\big)\big|\partial T/\partial z - k_0\big|, \quad (32)$$

## 2. Обсуждение результатов

Предложенная МИРТН может быть использована для оценки снизу скалярной плотности дислокаций $\rho$, возникающих при росте монокристаллов из расплава. Предположение о полной релаксации термоупругих напряжений, по-видимому, хорошо выполняется. Условия релаксации особенно благоприятны вблизи фронта кристаллизации, где температура кристалла максимальна. Доводом в пользу этого является экспоненциальная зависимость скорости дислокаций от температуры в монокристаллах кремния, германия и других подобных материалах (см., например, [11], глава 5). В этой области гардиент температуры $\nabla T$ можно приближенно считать направленным параллельно оси $z$ (по нормали к фронту кристаллизации) и использовать формулу (25) для оценки $\rho_1$. Согласно (10), скалярная плотность дислокаций $\rho$ может содержать также часть $\rho_2$, связанную с компенсированными дислокациями. Поэтому в предположении $\rho = \rho_1$ (11) будем получать оценку для $\rho$ снизу.

Обратимся к экспериментальным данным [12,13]. При выращивании лент германия на установке с пассивными экранами величина градиента температуры вблизи фронта кристаллизации составляет $T_{,z} \approx -0.25\,\mathrm{K/m}$ (см. рис. 1 в [12]), а величина $k_0$ имеет значение $k_0 \approx -0.18\,\mathrm{K/m}$. Отсюда на фронте кристаллизации имеем $|T_z - k_0| \approx 0.07\,\mathrm{K/m}$. Подставляя это значение в (32) и полагая $\chi \approx 10^{-5}\,\mathrm{K}^{-1}$, $b = 2 \cdot 10^{-10}\,\mathrm{m}$, получаем из (32) оценку $\rho = \rho_1 \approx 0.7 \cdot 10^8\,\mathrm{m}^{-2}$. Экспериментальные значения $\rho \approx (10^8{-}10^{10})\,\mathrm{m}^{-2}$ (см. с. 242 в [12]). Как видно, теоретические оценки на основе МИРТН действительно коррелируют с нижней границей наблюдаемых значений скалярной плотности дислокаций. Теоретические оценки находятся также в согласии с данными [13].

Формулы (25), (32) являются достаточно общими. Так, например, из них как частный случай получается (с точностью до несущественного множителя) выражение, ранее найденное в [6]. Таким образом, имеется соответствие и с известными частными теоретическими результатами. Развитый в данной работе подход позволяет рассматривать и трехмерные задачи, когда температурное поле зависит от всех трех координат. При этом минимум функционала $R$ (21) можно искать, используя пробные функции, которые являются решениями системы уравнений (18) (в частности можно использовать функции вида (9)).

Формулы (9), (13) содержат в себе зависимость плотности дислокаций от ориентации, которая наблюдается на эксперименте. Однако этот вопрос требует отдельного рассмотрения.

Таким образом, развитая в настоящей работе МИРТН дает правильное представление о влиянии характера температурного поля на плотность возникающих при росте монокристаллов дислокаций и позволяет предсказать величину минимальной плотности дислокаций, достижимую в конкретных условиях.

## Список литературы

[1] С.П. Никаноров. Изв. РАН. Сер. физ. **58**, *9*, 2 (1994).
[2] Р. Лодиз, Р. Паркер. Рост монокристаллов. Мир, М. (1974). 540 с.
[3] Ж. Фридель. Дислокации. Мир, М. (1967). 440 с.
[4] Ф. Теодор, Т. Дюффар, Ж.Л. Санталье, Ж. Песенти, Ж. Келлер, П. Дюссер, Ф. Люше, В.Н. Курлов. Изв. РАН. Сер. физ. **63**, *9*, 1693 (1999).
[5] Е. Биллиг. В кн.: Кремний. ИЛ, М. (1960).
[6] В.Л. Инденбом. Кристаллография **4**, 594 (1957).
[7] С.В. Цивинский. В сб.: Материалы первого совещания по получению полупроводниковых материалов способом Степанова и перспективам их применения в приборостроении. ФТИ им. А.Ф. Иоффе АН СССР, Л. (1968). С. 173.
[8] М.А. Косевич. Дислокации в теории упругости. Наук. думка, Киев (1978). 256 с.
[9] Ш.Х. Ханнанов. Распределения дислокаций. БНЦ УрО РАН, Уфа (1992). 220 с.
[10] Р. Де Вит. Континуальная теория дислокаций. Мир, М. (1977). 208 с.
[11] В.П. Алехин. Физика прочности и пластичности поверхностных слоев материалов. Наука, М. (1983). Гл. 5. 280 с.
[12] П.И. Антонов, В.С. Юферев. В кн.: Проблемы прочности и пластичности твердых тел / Отв. ред. С.Н. Журков. Наука, Л. (1979). С. 236.
[13] П.И. Антонов, С.И. Бахолдин, М.Г. Васильев, В.М. Крымов, В.С. Юферев. Изв. АН СССР. Сер. физ. **52**, *10*, 1997 (1988).