

Метод видеогониографии для изучения ограничения кристаллов сапфира, выращенных способом Степанова

© С.И. Бахолдин, В.Н. Маслов

Физико-технический институт им А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: maslov_vn@hotmail.com

(Поступило в Редакцию 2 марта 2015 г.)

Описаны конструкция видеогониографа и методика исследования при помощи видеогониографа. Проверена возможность применимости видеогониографа для исследования боковой поверхности монокристаллических стержней сапфира. Выполнены исследования ограничения боковой поверхности цилиндрических кристаллов сапфира различной ориентации, выращенных способом Степанова, методом видеогониографии и проведено сравнение результатов с данными фотогониографии.

Способ Степанова позволяет получать непосредственно из расплава монокристаллы заданной заранее формы. Управление формой в этом способе достигается за счет использования специального элемента — формообразователя, который формирует жидкий столб расплава с сечением, соответствующим сечению выращиваемого кристалла. Однако для монокристаллов характерно развитие на их поверхности естественных граней, которые также влияют на результирующую форму кристаллического изделия. В ряде случаев ограничение приводит к отклонению формы кристалла от задаваемой формообразователем. Так, наличие плоских граней на круглом стержне — это отклонение от цилиндричности. В других случаях, наоборот, гранная форма является желательной. Примером может служить выращивание базисноограниченных лент сапфира [1,2], поверхность которых не просто гладкая, а образована атомно-гладкой гранью пинакоида. Такие кристаллические пластины могут быть использованы без какой-либо дополнительной обработки как оптически прозрачные изделия или в качестве подложек в микроэлектронике.

Кроме решения практической задачи — управления формой и качеством поверхности профилированных монокристаллов — изучение ограничения кристаллов в процессе выращивания имеет большое значение для развития представлений о таких фундаментальных свойствах твердого тела, как свободная поверхностная энергия и определяемая ею равновесная форма кристалла.

Для изучения ограничения цилиндрических кристаллов ранее был предложен метод фотогониографии, позволяющий получать на фотобумаге развертку боковой поверхности кристалла. Первоначально он использовался для изучения профилированных кристаллов германия и антимонида индия [3].

Применимость метода фотогониографии к прозрачным монокристаллам сапфира вызывала сомнения по двум причинам. Во-первых, интенсивность отражения света от поверхности прозрачного кристалла значительно ниже, чем от практически зеркальной поверхности таких монокристаллов, как германий. Во-вторых, вызы-

вали опасения лучи освещающего потока, претерпевающие после преломления многократные отражения в кристалле. Детальное рассмотрение хода преломления и отражения в прозрачном кристалле [4] показало, что возникновение ложных изображений практически невозможно при установке перед приемником узкой щели, что в конструкции фотогониографа и так было предусмотрено [2].

Использование фотогониографа позволило установить [4], что на боковой поверхности цилиндрических кристаллов различных ориентаций кроме различных глазом зеркальных граней базиса c $\{0001\}$ ромбоэдра r $\{10\bar{1}1\}$ и призмы a $\{1\bar{2}10\}$ наблюдаются отражения от ряда второстепенных граней: дигексагональной призмы $\{14\bar{5}0\}$, семейства ромбоэдров $\{10\bar{1}1\}$ и дипирамид $\{10\bar{1}1\}$ (здесь и далее используются индексы кристаллографических направлений для структурной элементарной ячейки сапфира с отношением $c/a = 2.7305$). Кроме того, было замечено, что грани могут проявляться на фотограммах как в виде черных, так и в виде белых полос. Это является следствием неизбежных небольших ошибок в ориентации. В результате часть зеркальных граней оказывается не строго параллельными направлению вытягивания, а несколько наклоненными к расплаву. Такие грани дают сильную засветку фотобумаги, видимую как черная полоса. Грани на диаметрально противоположной стороне кристалла оказываются наклоненными от расплава и в силу этого проявляются слабее, иногда в виде узкого ребра на боковой поверхности. Такое ребро сильно рассеивает свет и проявляется на фотограмме в виде белой полосы.

В настоящей работе исследуется ограничение профилированных кристаллов сапфира в форме цилиндрических стержней различной кристаллографической ориентации методом видеогониографии, который является усовершенствованным методом фотогониографии. Целью настоящей работы является проведение кристаллографического анализа боковой поверхности цилиндрических монокристаллов сапфира, выращенных способом Степанова, определение набора граней, фактически наблю-

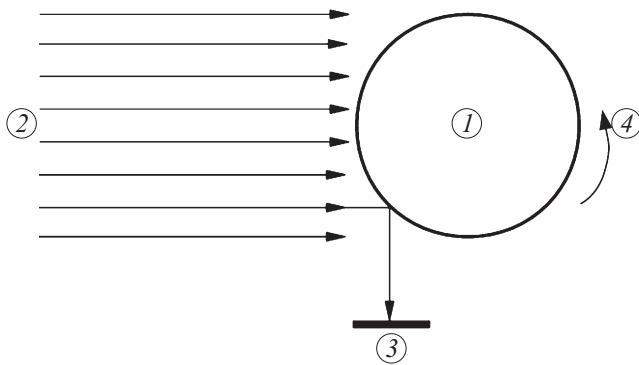


Рис. 1. Схема устройства видеогониографа: 1 — цилиндрический монокристалл, 2 — параллельный пучок света, 3 — камера высокого разрешения, 4 — направление вращения кристалла.

даемых на боковой поверхности, и вклада гранных участков в конечную форму цилиндрического кристалла. Ограничение боковой поверхности цилиндрических монокристаллов сапфира изучалось с помощью видеогониографа — усовершенствованного аналога фотогониографа [3,4]. Принцип действия видеогониографа состоит в следующем (рис. 1). Исследуемый кристалл 1 освещается параллельным пучком света 2. Луч, падающий на поверхность кристалла под углом 45° и отражающийся от нее, попадает на матрицу цифровой камеры высокого разрешения 3, сигнал с которой передается в компьютер по каналу связи USB 2.0, где обрабатывается специализированной программой по захвату, обработке и сохранению полученных данных. Алгоритм обработки данных заключается в следующем. Изображение захватывается в формате *.avi и сохраняется на жестком диске компьютера в виде отдельного видеофайла длительностью не менее времени полного оборота кристалла. Далее файл загружается в программу, которая производит его раскадровку и в специальном окне выводит один кадр (в программе предусмотрена функция выбора кадра путем введения номера кадра в диалоговое окно). Далее производится выбор электронного аналога механической щели фотогониографа — вертикальной полоски на кадре, по которой в дальнейшем будет строиться видеोगрамма. Для получения максимального разрешения ширина полоски принималась равной одному пикселю изображения. В случае фотогониографа для получения такого разрешения потребовалась бы щель шириной $\sim 30 \text{ мкм}$, тогда, как обычно, использовались щели шириной $0.2\text{--}0.5 \text{ мм}$. Выбранная полоска соответствует тому лучу, который попадает на поверхность кристалла под углом 45° . Далее производится усреднение по высоте кадра и строится график изменения интенсивности отраженного света в зависимости от угла поворота кристалла в пределах $0\text{--}360^\circ$. При частоте съемки 30 кадров в секунду разрешение видеогониографа составляло $\sim 12' \text{ min}$. Для эксперимента исполь-

зовались цилиндрические монокристаллы сапфира диаметром 8 мм двух кристаллографических ориентаций направления выращивания $\{0001\}$ и $\{11\bar{2}0\}$. Первое из них является практически важным и используется в большинстве работ по выращиванию кристаллов сапфира из расплава. Второе дает уникальную возможность сравнения развития граней c и r , поскольку в этом случае обе грани ориентированы вдоль цилиндрической поверхности кристалла и в процессе роста находятся в одинаковых капиллярных и тепловых условиях, а также они визуально различимы на кристаллах как зеркальные участки.

Кристаллы выращивались в стандартной осесимметричной тепловой зоне с цилиндрическим графитовым нагревателем со скоростью $0.5\text{--}1.2 \text{ мм/мин}$ в атмосфере аргона. Тигель и формообразователь были выполнены из молибдена. Ориентация выставлялась с точностью до нескольких минут с помощью лазерной юстировки загрузки непосредственно в ростовой камере [4].

Ограничение боковой поверхности кристаллов ориентации $\{0001\}$

На рис. 2 приведен график интенсивности отражения от боковой поверхности кристалла сапфира ориентации $\{0001\}$, усредненный по четырем профилям, полученным по описанному выше алгоритму, что соответствует 32 мм по длине кристалла.

На боковой поверхности монокристаллических круглых стержней нами наблюдались 3 вида отклонений от заданного диаметра:

1. Зеркальная грань — будет проявляться на графике интенсивности в виде высокого узкого пика при большой ширине с плоской вершиной. В случае кристаллов сапфира в силу их кристаллографии все плоские грани попарно параллельны. В случае, если кристалл рос без нарушения ориентации, интенсивность пиков от параллельных плоских граней должна быть одинаковой, в ином случае интенсивность может отличаться: большую интенсивность будет давать та грань, которая была

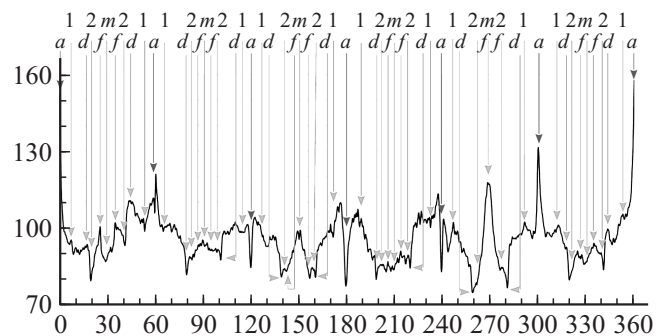


Рис. 2. График интенсивности отражения от боковой поверхности кристалла сапфира ориентации $\{0001\}$, построенный по результатам видеогониографического исследования.

наклонена к расплаву. На рис. 2 зеркальным граням соответствуют, например, рефлексы, находящиеся на отметках 0° (360°) и 300° — грани призмы a .

2. Ребро — будет проявляться на графике интенсивности в виде острых узких провалов, так как ребро — это участок с малым радиусом кривизны, на котором возникает сильное рассеяние света. Ребра на наших кристаллах могут возникать в случае отклонение ориентации направления выращивания кристалла, когда грань рационального направления несколько наклонена в сторону от расплава. Наиболее явно на рис. 2 ребрам соответствуют рефлексы, находящиеся на отметках 60° , 120° , 180° и 240° — призма a ; 150° , 270° — призма m .

3. Участки с радиусом кривизны, бóльшим радиуса кристалла, задаваемого формообразователем, — такие участки на графике интенсивности будут проявляться в виде невысоких подъемов, не имеющих четкого максимума, с пологими крыльями. Характерным примером является интервал 144° – 156° . В этом месте на фронте кристаллизации существовала наклонная зеркальная грань r , проявившаяся на боковой поверхности в виде видимой глазом ступенчатой полосы, совпадающей по положению со слабо проявляющимися гранями призмы m . Ширина этих подъемов $\sim 10^\circ$ соответствует ширине полос, наблюдаемых на кристалле. Аналогичные подъемы наблюдаются и вблизи плоскостей призмы a , например, в интервале 165° – 198° . По-видимому, эти подъемы связаны с проявлением наклонных граней гексагональных дипирамид, лежащих в одном поясе с гранями призмы a , хотя на фронте кристаллизации эти грани не обнаружены. На боковой поверхности ступенчатая полоса видна в микроскоп.

Таким образом, в формировании боковой поверхности этого кристалла принимают участие грани гексагональных и дигексагональных призм, осложненные проявлениями наклонных граней ромбоэдров и гексагональных дипирамид.

Интересным фактом является то, как ведут себя дигексагональные призмы — при хорошем проявлении призмы m , в виде ребер проявляются дигексагональные призмы d и f — провалы на графике, а дигексагональная призма 2 проявляется в виде небольшого возвышения на графике. Если же призма m проявляется в виде провала, наблюдается обратное соотношение. Такая же зависимость наблюдается между призмой a и дигексагональной призмой 1 , которая проявляется в виде пика на графике, только в случае если призма a также проявляется в виде пика.

График (рис. 2) иллюстрирует, что сильнее всего проявляются грани гексагональной призмы a , соответствующие углам 0 – 360° и 300° . Остальные грани этой призмы проявились в виде ребер на фоне общего всплеска интенсивности окрестностей этих пиков. Это позволяет говорить, что у кристалла нарушена ориентация. Скорее всего, интервал 260 – 360° был наклонен в сторону расплава. Вероятнее всего, плоскость разориентации проходит близко к призме m через точки 90° и

270° , так как пики призмы a , перпендикулярные этому направлению, симметричны (0° и 180°).

Ограничение боковой поверхности кристаллов ориентации $\{11\bar{2}0\}$

На рис. 3 приведен график интенсивностей, построенный по результатам видеогониографического исследования кристалла ориентации $\{11\bar{2}0\}$. В данном случае специально был выращен кристалл с минимальной ошибкой в ориентации направления выращивания (около $5'$).

Рис. 3 хорошо иллюстрирует, что наиболее ярко выраженными являются грани пинакоида c и ромбоэдра r , что согласуется с визуальными наблюдениями. Форма пиков c и r различна, что связано с морфологией этих граней. В случае c переход от грани к округлой поверхности происходит плавно путем сгущения ступеней, что проявляется на графике интенсивности в виде пьедестала у основания пика. У r такого пьедестала не наблюдается, но и на кристалле переход от плоской грани к округлой части происходит резко с четким ребром между гранной и округлой поверхностями. На графике проявляется в виде провалов с двух сторон от пика r . На боковой поверхности монокристаллов сапфира данной ориентации методом видеогониографии выявлено большое количество второстепенных граней ромбоэдров, намного превышающее количество граней, выявляемых методом фитогониографии.

Из графика (рис. 3) видно, что интенсивность пиков r различна, что свидетельствует о наличии небольшой остаточной разориентации кристалла. Об этом свидетельствует также проявление некоторых параллельных плоскостей в виде граней или ребер. Хорошим примером являются ромбоэдры 24 и 49 .

Необходимо отметить, что соотношение размеров граней c и r на кристалле $c : r$ составляет $2 : 1$, и ширина пиков этих граней на середине высоты имеет такое же соотношение.

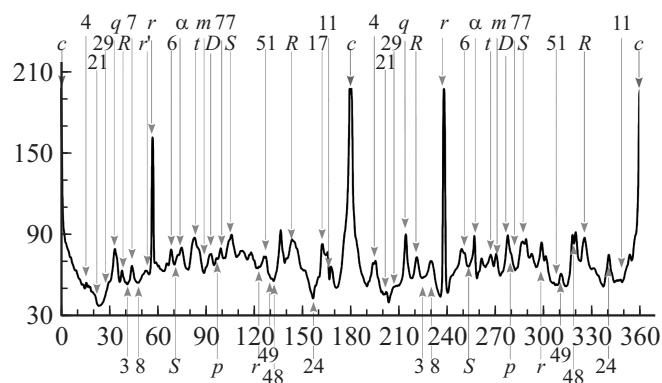


Рис. 3. График интенсивности отражения от боковой поверхности кристалла сапфира ориентации $\{11\bar{2}0\}$, построенный по результатам видеогониографического исследования.

Заключение

Метод видеогониографии показал себя как перспективный метод изучения кристаллографии боковой поверхности монокристаллических стержней различных веществ. Разрешающая способность и возможности этого метода во много раз превышают возможности прародителя метода — метода фотогониографии [1]. Острые пики и острые глубокие провалы на графике интенсивности являются результатом проявления сингулярных граней, параллельных направлению вытягивания, или немного отклоненных от него, например, из-за ошибки в ориентации затравки. В первом случае на кристалле наблюдается участок с плоской зеркальной поверхностью, во втором случае — ребро. Плавные широкие подъемы на графике свидетельствуют об общем увеличении радиуса кривизны — локальном уплощении кристалла. Их угловое положение соответствует областям возможного существования наклонных сингулярных граней, которые могут проявляться на фронте кристаллизации и давать ступенчатые полосы на боковой поверхности. Качественно эти особенности проявлялись и на фотограммах [1,4], но метод видеогониографии позволяет определять значительно большее количество рациональных направлений, проявляющихся на кристалле, и делать выводы о морфологии его поверхности.

Метод видеогониографии в отличие от метода фотогониографии, позволил выявить десятки не выявленных ранее граней на боковой поверхности монокристаллических стержней сапфира, что особенно ярко видно на стержнях ориентации $\{11\bar{2}0\}$. Наряду с гранями метод видеогониографии показал неизвестные ранее особенности морфологии поверхности монокристаллических стержней сапфира. Установлены также неизвестные до настоящего момента закономерности взаимосвязи между проявляющимися гранями: если грань, принадлежащая одной простой форме, проявляется хорошо (в виде плоской грани), то близлежащая грань, принадлежащая другой простой форме и находящаяся в непосредственной близости от первой, будет проявляться в виде ребра. Если же первая грань в силу каких-либо причин проявляется в виде ребра, то грань, находящаяся в непосредственной близости от нее, проявится в виде плоской площадки.

Метод также позволяет определять разориентацию цилиндрического кристалла, хотя на данном этапе только на качественном уровне. Установлено, что разориентация кристалла сильнее влияет на слабо проявляющиеся простые формы. Влияние разориентации на хорошо проявляющиеся простые формы, такие как грани c и r сапфира, наблюдается, но не приводит к их исчезновению или проявлению в виде ребер.

Список литературы

- [1] Антонов П.И., Бахолдин С.И., Крымов В.М. и др. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2001. № 10. С. 21–27.
- [2] Антонов П.И., Крымов В.М., Носов Ю.Г., Шульпина И.Л. // Изв. АН. Сер. физ. 2004. Т. 68. № 6. С. 777–783.
- [3] Антонов П.И., Вахмянин Л.П. // Изв. ФН СССР. Сер. физ. 1972. Т. 36. № 3. С. 501–506.
- [4] Носов Ю.Г., Бахолдин С.И., Крымов В.М. // ЖТФ. 2009. Т. 79. № 2. С. 76–82.