Влияние анизотропии на термоупругие напряжения в цилиндрических кристаллах оксида галлия, выращиваемых из расплава

© С.И. Бахолдин, Е.В. Галактионов, В.М. Крымов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: V.Krymov@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 11 мая 2023 г.
В окончательной редакции 11 сентября 2023 г.
Принято к публикации 30 октября 2023 г.

Исследование термических напряжений в кристаллах, выращиваемых из расплава, имеет большое значение для оптимизации режимов роста. Появление новых перспективных материалов, таких как оксид галлия, требует проведения расчетов напряжений с учетом анизотропии тепловых и упругих свойств материала. Проведено исследование влияния анизотропии на распределение термоупругих напряжений в тонких кристаллических стержнях оксида галлия. Приведены приближенные формулы для компонент тензора напряжений, полученные с помощью асимптотического интегрирования уравнений термоупругости с учетом прямолинейной анизотропии общего вида. Проведено сравнение величин напряжений для двух направлений выращивания. Показано, что выбор ориентации направления выращивания позволяет управлять величиной и распределением термоупругих напряжений, возникающих в кристаллах оксида галлия при их выращивании из расплава.

Ключевые слова: термоупругие напряжения, асимптотический метод, анизотропия тепловых и упругих свойств.

DOI: 10.61011/JTF.2023.12.56800.f249-23

Введение

В последнее время прозрачные полупроводники на основе кристаллов оксида галлия ($\beta - \mathrm{Ga_2O_3}$) вызывают большой интерес при создании новых типов электронных устройств (фотодиоды, прозрачные тонкопленочные транзисторы, энергосберегающие окна и т.д.) [1,2]. Одним из способов выращивания объемных кристаллов оксида галлия является метод Чохральского, в котором кристалл вытягивается из расплава, находящегося в иридиевом тигле. Несмотря на целый ряд технологических трудностей к настоящему времени выращены кристаллы в форме цилиндров, диаметром до 50 mm [3–6]. Однако для дальнейшего развития технологии получения совершенных кристаллов требуются исследования термических напряжений и дефектов структуры, возникающих в процессе роста. Для кристаллов β-фазы оксида галлия с низкосимметричной моноклинной структурой нужно также учитывать сильную анизотропию тепловых и упругих свойств. В ряде работ проведено численное моделирование процессов теплообмена в кристалле и ростовой зоне и проведены расчеты термических напряжений [7–9]. Показано, что численно рассчитанные максимальные напряжения по критерию Мизеса сильно зависят как от кристаллографического направления выращивания [7], так и от конфигурации элементов тепловой зоны [9]. Безусловно указанные расчеты являются хорошим инструментом изучения процессов теплообмена в ростовой зоне и определения полей температуры и термических напряжений в выращиваемых кристаллах, но требуют наличия сложных пакетов специальных программ и мощных вычислительных ресурсов.

В настоящей работе на основе аналитических расчетов проведено исследование влияния анизотропии тепловых и упругих свойств на распределение термоупругих напряжений в тонких цилиндрических кристаллах оксида галлия, выращиваемых из расплава методом Чохральского. Расчеты выполнены по приближенным формулам, полученным с помощью решения стационарной задачи термоупругости методом сингулярных возмущений с учетом прямолинейной анизотропии общего вида [10,11].

1. Приближенные формулы для термоупругих напряжений

Приводим коэффициенты теплового расширения и упругой жесткости для стандартной системы координат (ось z совпадает с кристаллографическим направлением [001] [7]. Коэффициенты теплового расширения: $\overline{\alpha}_{11} = 4.7 \cdot 10^{-6}$, $\overline{\alpha}_{12} = \overline{\alpha}_{21} = 0$, $\overline{\alpha}_{13} = \overline{\alpha}_{31} = -0.17 \cdot 10^{-6}$, $\overline{\alpha}_{22} = 8.3 \cdot 10^{-6}$, $\overline{\alpha}_{23} = \overline{\alpha}_{32} = 0$, $\overline{\alpha}_{33} = 8.5 \cdot 10^{-6}$ (K^{-1}). Тензор коэффициентов упругой жесткости (размерность

$(10^{10}\,\mathrm{N/m^2})$) имеет вид

$$(\overline{c}_{ij}) = \begin{pmatrix} 23.8 & 13.0 & 15.2 & 0 & -0.4 & 0 \\ 13.0 & 35.9 & 7.8 & 0 & 0.2 & 0 \\ 15.2 & 7.8 & 34.6 & 0 & 1.9 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 4.9 & 0 & 0.6 \\ -0.4 & 0.2 & 1.9 & 0 & 9.1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0.6 & 0 & 10.7 \end{pmatrix}.$$

Размерные величины коэффициентов теплового расширения и упругой жесткости обозначаются чертой сверху. Обращаем эту матрицу и переходим к коэффициентам упругой податливости. Будем рассматривать кристаллический стержень длины $L = 0.1\,\mathrm{m}$ и радиуса $R = 0.01\,\mathrm{m}$. Переходим к безразмерным координатам, следующим образом: $\overline{r} = R\,r$, $\overline{z} = L\,z$. Малый параметр задачи $\varepsilon = R/L$. Переходим к безразмерным коэффициентам теплового расширения и упругой податливости с помощью нормировки на соответствующие инварианты $\overline{\alpha}_{00} = 7.17 \cdot 10^{-6}\,(\mathrm{K^{-1}})$, $\overline{s}_{00} = 0.051 \cdot 10^{-10}\,(\mathrm{m^2/N})$.

Работаем в цилиндрической системе координат (r, θ, z). С помощью метода асимптотического интегрирования уравнений термоупругости [11] получаем с точностью до членов порядка ε^2 формулы для компонент тензора термоупругих напряжений

$$\overline{\sigma}_r(r, z) = A_1\,(1 - r^2)\,\overline{\Delta}\,\frac{d^2T_0}{dz^2}\,\varepsilon^2,$$

$$\overline{\sigma}_\theta(r, z) = A_1\,(1 - 3r^2)\,\overline{\Delta}\,\frac{d^2T_0}{dz^2}\,\varepsilon^2, \quad \overline{\sigma}_{r\theta} = 0,$$

$$\overline{\sigma}_{rz}(r, \theta, z) = \big(A_2\sin(\theta) + A_3\cos(\theta)\big)\,(1 - r^2)\,\overline{\Delta}\,\frac{d^2T_0}{dz^2}\,\varepsilon^2,$$

$$\overline{\sigma}_{\theta z}(r, \theta, z) = \big(A_2\cos(\theta) - A_3\sin(\theta)\big)\,(1 - 3r^2)\,\overline{\Delta}\,\frac{d^2T_0}{dz^2}\,\varepsilon^2,$$

$$\overline{\sigma}_z(r, \theta, z) = B_0[1 + r^2[B_1\cos^2(\theta) + B_2\sin(\theta)\cos(\theta) - (4 + B_1)\sin^2(\theta)]\,\overline{\Delta}\,\frac{d^2T}{dz^2}\,\varepsilon^2,$$

где

$$B_0 = -\frac{1}{s_{33}}\left[(s_{13} + s_{23})A_1 + s_{34}A_2 + s_{35}A_3 - \frac{1}{8}\,(\alpha_1 + \alpha_2 - \alpha_3)\right],$$

$$B_1 = \frac{1}{B_0}\left[(s_{13} + 3s_{23})A_1 + 3s_{34}A_2 + s_{35}A_3 - \frac{1}{2}\left(\alpha_1 - \frac{1}{2}\,\alpha_3\right)\right],$$

$$B_2 = -\frac{1}{B_0}\left[2(s_{36}A_1 + s_{35}A_2 + s_{34}A_3) + \frac{1}{2}\,\alpha_6\right],$$

$$\alpha_i = \alpha_{ii},\ i = 1, 2, 3,\ \alpha_4 = \alpha_{23},\ \alpha_5 = \alpha_{13},\ \alpha_6 = \alpha_{12}.$$

В этих формулах $\overline{\Delta} = \overline{\alpha}_{00}\,\overline{T}_{00}/\overline{s}_{00}$ — нормирующий множитель, обеспечивающий переход от безразмерных к размерным компонентам тензора термоупругих напряжений, а d^2T_0/dz^2 — безразмерная вторая производная температуры по оси стержня, $\overline{T}_{00}$ — температура плавления оксида галлия ($2080°\,\mathrm{K}$). Температуру нормируем на температуру плавления: $\overline{T}_0 = T_0\,\overline{T}_{00}$. Считаем вторую производную температуры постоянной и выбираем значение второй производной температуры на расстоянии $0.02\,\mathrm{m}$ от фронта кристаллизации: $d^2\overline{T_0}/d\overline{z}^2 = -5 \cdot 10^4\,\mathrm{K/m^2}$, $d^2T_0/dz^2 = -5 \cdot 10^4 L^2/\overline{T}_{00} = -0.24$. Постоянные A_1, A_2, A_3 определяются из системы трех линейных алгебраических уравнений

$$a_{11}A_1 + a_{12}A_2 + a_{13}A_3 = b_1,$$

$$a_{12}A_1 + a_{22}A_2 + a_{23}A_3 = b_2,$$

$$a_{13}A_1 + a_{23}A_2 + a_{33}A_3 = b_3,$$

$$a_{11} = 3s'_{22} + 2s'_{12} + s'_{66} + 3s'_{11},$$

$$a_{12} = 3s'_{24} + s'_{14} + s'_{56},\ a_{13} = 3s'_{15} + s'_{25} + s'_{46},$$

$$a_{22} = 3s'_{44} + s'_{55}, \quad a_{23} = 2s'_{45},$$

$$a_{33} = 3s'_{55} + s'_{44},\ s'_{ij} = s_{ij} - \frac{s_{i3}s_{3j}}{s_{33}},\ i, j = 1, 2, 4, 5, 6,$$

$$b_1 = -\frac{1}{4s_{33}}\,[(2\alpha_2 - \alpha_3)s_{13} + (2\alpha_1 - \alpha_3)s_{23} - \alpha_6 s_{36} + (\alpha_1 + \alpha_2)s_{33}],$$

$$b_2 = -\frac{1}{4s_{33}}\,[(2\alpha_1 - \alpha_3)s_{34} - \alpha_6 s_{35} + \alpha_4 s_{33}],$$

$$b_3 = -\frac{1}{4s_{33}}\,[(2\alpha_2 - \alpha_3)s_{35} - \alpha_6 s_{34} + \alpha_5 s_{33}].$$

2. Результаты расчета напряжений

На рис. 1 представлены результаты расчетов компонент тензора термоупругих напряжений для стандартной системы координат (ось z совпадает с кристаллографическим направлением [001]). Анализ компонент тензора термоупругих напряжений для ориентации направления выращивания кристалла [001] показывает, что касательное напряжение $\sigma_{r\theta}$ равно нулю, нормальные компоненты σ_r и σ_θ (рис. $1,a$) не зависят от координаты θ и распределены в направлении радиуса по параболе. Заметим, что такая ситуация имеет место для всех ориентаций кристаллического стержня, что следует из приближенных формул для этих компонент тензора, приведенных выше. Это согласуется с данными по расчетам напряжений в изотропном приближении. Сильную анизотропию по поперечному сечению кристалла демонстрируют три компоненты σ_{rz} (рис. $1,b$), $\sigma_{\theta z}$ (рис. $1,c$) и σ_z (рис. $1,d$). Компонента σ_{rz} равна нулю на внешней поверхности, растет к центру и имеет разные знаки в

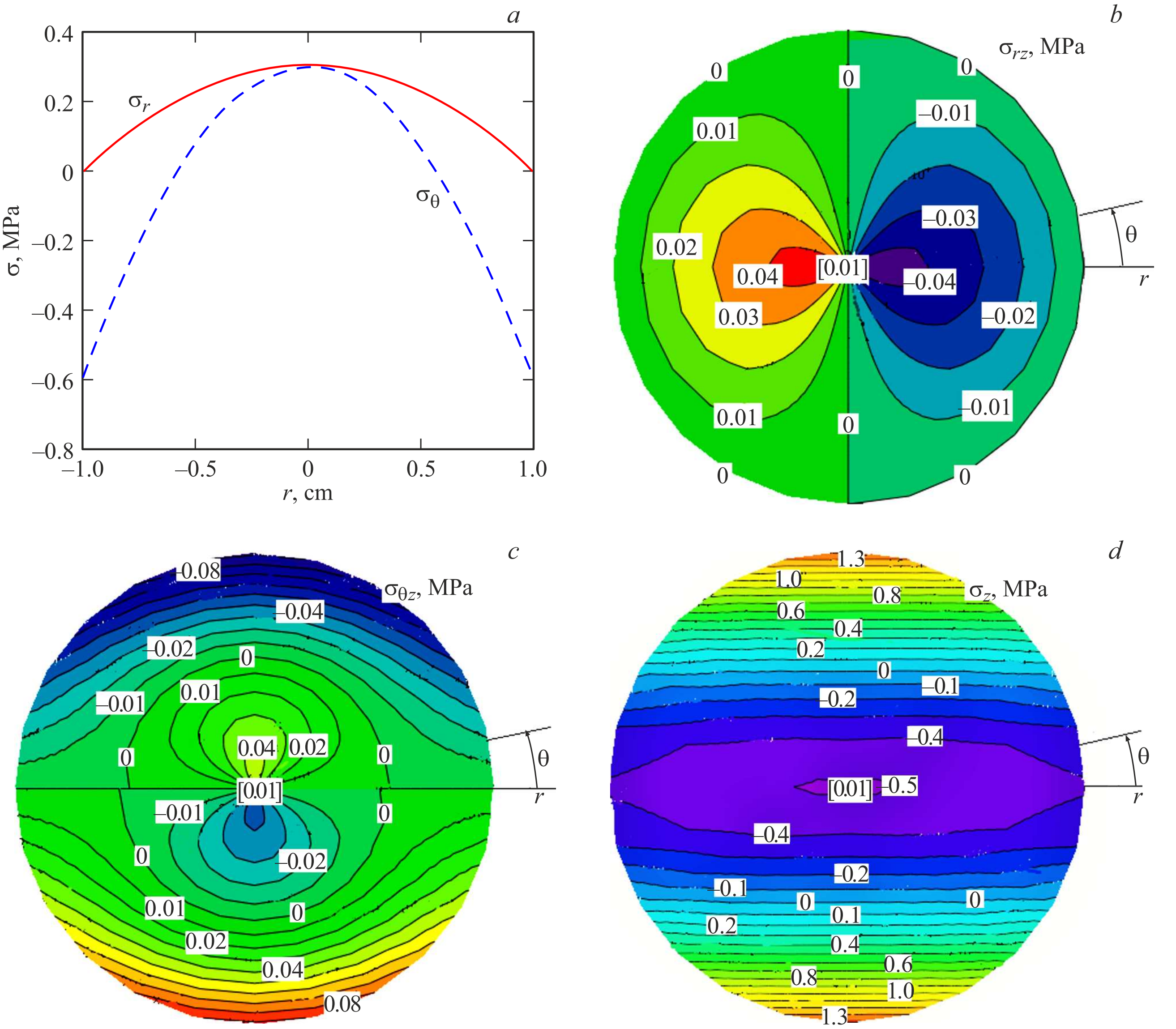

Рис. 1. Распределение напряжений σ_r и σ_θ по радиусу поперечного сечения кристалла (*a*); эпюры напряжений σ_{rz} (*b*), $\sigma_{\theta z}$ (*c*) и σ_z (*d*) в поперечном сечении кристалла для случая выращивания по оси z с направлением [001].

направлениях $\theta = 0$ и π. Более сложный характер распределения по сечению имеет компонента $\sigma_{\theta z}$: нулевая область расположена по окружности при $r = 0.5$ cm, напряжение увеличивается к центру до 0.04 и до 0.08 MPa к поверхности. Соответственно знак напряжения в направлениях $\theta = \pi/2$ и $3\pi/2$ разный. Отметим также, что эти компоненты вносят по величине небольшой вклад в общую картину распределения напряжений. Наиболее значимой по величине является нормальная компонента σ_z, максимальные значения 1.3 MPa на поверхности при $\theta = \pi/2$ и $3\pi/2$. В середине кристалла область отрицательных значений с максимумом -0.5 MPa, причем все линии равных напряжений расположены практически вдоль направления $\theta = 0$.

На рис. 2 показаны результаты расчетов для второй ориентации кристалла: ось z совпадает с кристаллографическим направлением [010]. Эта ориентация чаще всего используется при выращивании кристаллов оксида галлия методом Чохральского и рассмотрена также в [7]. Для расчета напряжений в этой ориентации проводился соответствующий пересчет тензоров упругих постоянных и коэффициентов теплового расширения. Анализ напряжений для этого случая показал, что компоненты σ_r и σ_θ практически не изменились, касательные компоненты тензора напряжений $\sigma_{rz}, \sigma_{\theta z}$ оказались равны нулю. Наиболее значимой, как и в первом случае, стала компонента σ_z, причем картина распределения по сечению близка к первому случаю, но величины напряжений на поверхности несколько больше (до 1.5 MPa). По величине напряжений наши расчеты по формулам близки к результатам численных вычислений. Максимальные средние напряжения, рассчитанные в [7]

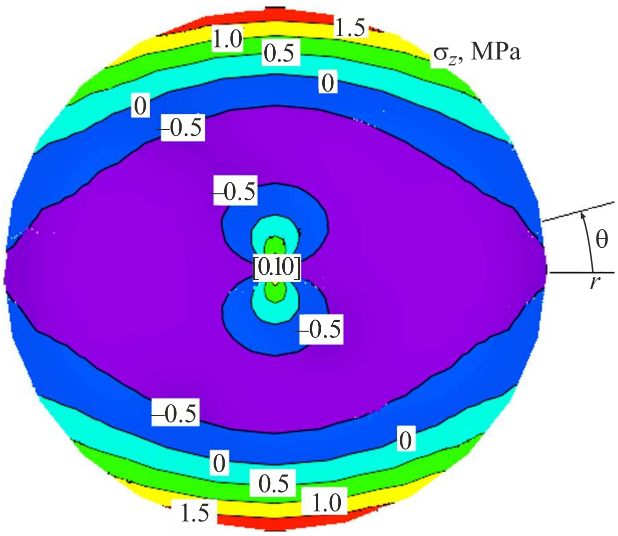

Рис. 2. Эпюра нормального напряжения σ_z для случая ориентации кристалла в направлении [010].

по критерию Мизеса, составили примерно 6 MPa для кристалла в два раза большего диаметра. На наш взгляд, проведенные расчеты показывают сильное влияние анизотропии свойств кристалла оксида галлия и ориентации направления выращивания на термоупругие напряжения. Однако для выбора оптимальной ориентации направления выращивания и минимизации образования дефектов структуры (дислокаций, границ блоков и двойников) необходимо еще решить задачу пересчета компонент тензора напряжений по плоскостям скольжения.

Заключение

Проведено сравнение величин напряжений для двух направлений выращивания. Показано, что учет анизотропии упругих свойств и теплового расширения, а также выбор ориентации направления выращивания кристалла оксида галлия относительно кристаллографических осей позволяют управлять величиной и распределением термоупругих напряжений, возникающих в процессе выращивания, а значит, и степенью его структурного совершенства.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] Z. Galazka, S. Ganschow, K. Irmschera, D. Klimm, M. Albrecht, R. Schewski, M. Petsch, T.Schulz, A. Dittmar, A. Kwasnievwski, R. Grueneberg, S.B. Anooz, A. Popp, U. Juda, I.M. Hanke, Th. Schroeder, M. Bickermann. Progr. Crystal Growth Character. Mater., **67** (1), 100511 (2021). DOI: 10.1016/j.pcrysgrow.2020.

[2] S.I. Stepanov, V.I. Nikolaev, V.E. Bougrov, A.E. Romanov. Adv. Mater. Sci., **44**, 63 (2016).

[3] Z. Galazka, K. Irmscher, R. Uecker, R. Bertram, M. Pietsch, A. Kwasniewski, M. Naumann, T. Schulz, R. Schewski, D. Klimm, M. Bickermann. J. Crystal Growth, **404**, 184 (2014). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2014.07.021

[4] Z. Galazka. J. Appl. Phys., **131**, 031103 (2022). DOI: 10.1063/5.0076962

[5] J. D. Blevins, K. Stevens, A. Lindsey, G. Foundos, L. Sande. IEEE Transactions on Semicond. Manufacturing, **32** (4), 466 (2019). DOI: 10.1109/TSM.2019.2944526

[6] W. Mu, Z. Jia, Y. Yin, B. Fu, J. Zhang, J. Zhanga, X Tao. Cryst. Eng. Comm., **21**, 2762 (2019). DOI: 10.1039/C8CE02189A

[7] W. Miller, K. Böttcher, Z. Galazka, J. Schreuer. Crystals, **7**(1), 26 (2017). DOI: 10.3390/cryst7010026

[8] D. Wu, N. Xia, K. Ma, J. Wang, Ch. Li, Z. Jin, H. Zhang, D. Yang. Crystals, **12** (12), 1715 (2022). DOI: 10.3390/cryst12121715

[9] X. Tang, B. Liu, Y. Yu, Sh. Liu, B. Gao. Crystals, **11** (1), 25 (2021). DOI: 10.3390/cryst11010025

[10] P.I. Antonov, S.I. Bakholdin, E.V. Galaktionov, E.V. Tropp, S.P. Nikanorov. J. Crystal Growth, **52** (1), 404 (1981). DOI: 10.1016/0022-0248(81)90226-8

[11] И.Е. Зино, Э.А. Тропп. *Асимптотические метолы в задачах теории теплопроводности и термоупругости* (Изд-во ЛГУ, Л., 1978)