

# Выращивание тугоплавких монокристаллов методом плазменно-дугового переплава при стабилизации температуры расплава

М. А. Пономарев

---

Рассмотрено использование специальных систем стабилизации, позволяющих повысить устойчивость процесса выращивания тугоплавких монокристаллов карбидов и боридов переходных металлов за счет снижения тепловых возмущений расплава при плазменно-дуговом переплаве (ПДП). Проведен анализ распределения температуры на поверхности расплава и слитка, позволивший организовать устойчивую работу системы стабилизации температуры расплава при выращивании монокристаллов карбида титана и диборида титана.

**Ключевые слова:** плазменно-дуговой переплав, карбид титана, диборид титана.

---

Specially designed stabilization systems for reducing the thermal and hydrodynamic perturbations of the melt at plasma-arc growth process of refractory single crystals such as carbides and borides of Group IV–VI transition metals are considered. For more suitable stabilization systems work at plasma-arc remelting crystals growth of titanium carbide and diboride the temperature disturbances analysis of the melt are made.

**Keywords:** plasma-arc remelting, titanium carbide, titanium diboride.

---

## Введение

Метод плазменно-дугового выращивания монокристаллов по видоизмененной методике Вернейля [1, 2] позволяет получать тугоплавкие монокристаллы наиболее крупных размеров, в том числе монокристаллы карбидов и боридов переходных металлов IV–VI групп, которые рассматриваются в последнее время как перспективные материалы для подложек при изготовлении полупроводников на основе нитридной керамики [3–5]. При ПДП рост монокристаллов сопровождается значительным перегревом расплавленного вещества. Это является предпосылкой для получения кристаллов высокого качества и, прежде всего, высокой чистоты [6, 7]. В то же время, бестигельность плазменно-дугового метода выращивания монокристаллов наряду с значительным перегревом расплава поднимают проблему повышения устойчивости роста кристаллов и качества получаемых слитков в условиях высокого уровня возмущений параметров процесса. Повысить устойчивость ростового процесса за счет снижения

тепловых и гидродинамических возмущений расплава может позволить использование специальных систем стабилизации параметров процесса [8–11], некоторые из которых рассматриваются в данной работе.

## Устойчивость процесса при выращивании монокристаллов методом ПДП

На устойчивость процесса при бестигельном выращивании монокристаллов плазменно-дуговым методом влияет устойчивость пространственного положения ванны расплава, стабильность ее геометрических и температурных характеристик [8, 10]. Капиллярное формообразование ванны расплава [11] и значительные глубина и перегрев расплава [1] приводят к высокой вероятности потери ванны расплава гидростатической устойчивости — проседанию, проливу расплава, нарушению симметрии в кристаллизационной системе [10]. Потеря гидростатической устойчивости может возникнуть из-за увеличения высоты мениска расплава выше предельного значения вследствие его сильного перегрева, или

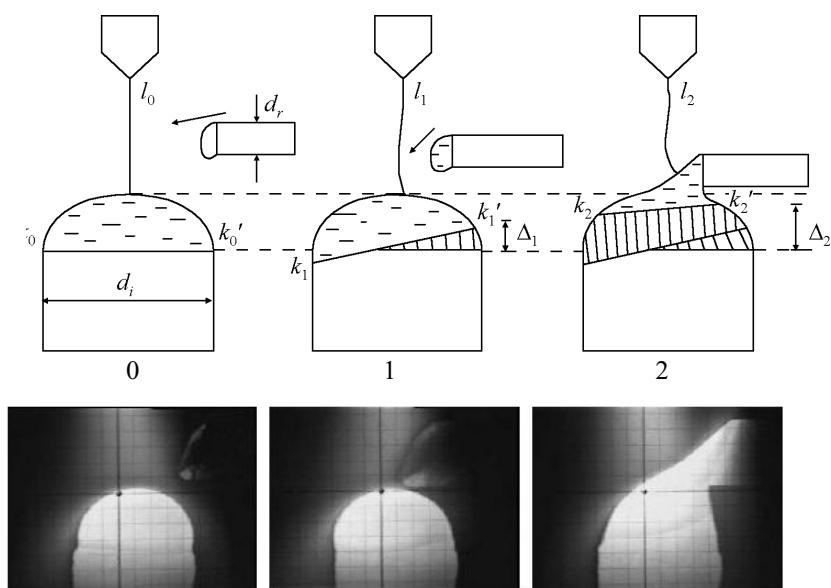


Рис. 1. Стадии 0 – 2 цикла подпитки ванны расплава и фото процесса.

из-за крупных подпитывающих порций. Наряду с нарушением формы расплава при подпитке могут возникать различные тепловые возмущения в системе из-за нарушения симметрии плазменной струи и смещения анодной привязки дуги. Подача сырья в расплав может осуществляться переплавом стержней, инертного или реакционноспособного порошка, что влияет на уровень возмущений и устойчивость процесса [8], определяет направление и величину скорости, с которой фактически происходит кристаллизация слитка [10]. В процедуре подачи в расплав стержневого материала существует ряд стадий: 1 — ввод стержня в область плазмы; 2 — ссаживание капли в расплав; 3 — разрыв контакта стержня с расплавом; 4 — вывод стержня из плазмы; 5 — пауза и восстановление симметрии плазменной струи, характеристик электрической дуги, формы и температурного поля в расплаве. На рис. 1а приведена схема цикла подпитки для стадий 1–2. Линии  $k_i - k_i'$  (где  $i = 0, \dots, 5$ ) показывают положение границы раздела между жидкой и твердой фазами на разных стадиях; значения  $\Delta_i$  характеризуют толщины слоев, закристаллизовавшихся на каждой стадии. Слой, вырастающий за цикл подпитки, неоднороден и содержит участки, образующиеся на разных стадиях с разной скоростью и направлением. Видеозапись процесса подпитки позволила зарегистрировать во времени положение видимой на поверхности слитка границы раздела жидкой и твердой фаз, получить оценку “сверху” скорости кристаллизации расплава на всех стадиях цикла. Изменения формы ванны расплава на стадиях 1–2 при выращивании моно-

кристалла карбида титана (TiC) представлены на рис. 1б кадрами видеосъемки. Длина электрической дуги  $l_i$  ( $i = 0, \dots, 5$ ) изменяется на разных стадиях (рис. 1а). Рис. 2а иллюстрирует изменение падения напряжения

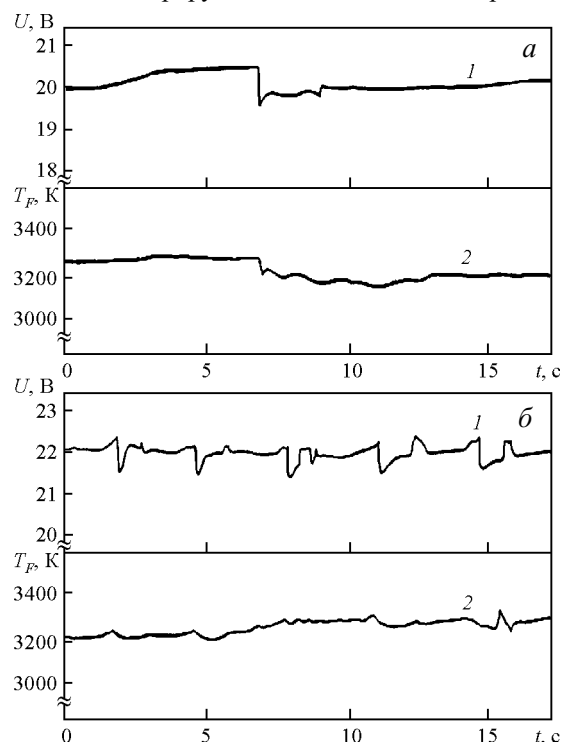


Рис. 2. Характерные изменения напряжения дуги и эффективной температуры расплава на 1–5 стадиях единичного цикла подпитки (а) и для ряда циклов подпитки (б) расплава TiC (диаметр слитка  $d_i \approx 8$  мм, стержня —  $d_r \approx 4$  мм): а — частота подпитки  $\nu \approx 3 \text{ мин}^{-1}$ ; б —  $\nu \approx 15 \text{ мин}^{-1}$ .

на дуге ( $U$ ) на стадиях 1 – 5 для единичного цикла подпитки, рис. 2б — для ряда циклов подпитки. Изменения  $U$  во времени отражают изменения длины дуги  $l_r$ . Соответственно, изменяется мощность дуги, тепловой поток в расплав и эффективная температура поверхности расплава ( $T_F$ ) вблизи границы  $k_0 - k_0'$  (рис. 2а, б). Из рис. 1 и 2 видно — температура расплава испытывает колебания, сопровождающиеся периодическими перемещениями границы раздела “расплав – кристалл”. На стадии паузы исходное распределение температуры и глубина расплава могут не восстановиться. Возможны как перегрев расплава и возрастание высоты мениска, что увеличивает вероятность растекания расплава, так и охлаждение расплава и уменьшение высоты мениска, что может приводить к примерзанию стержня к вершине слитка. Для устойчивого протекания ростового процесса необходима дополнительная стабилизация температуры расплава.

### Стабилизация параметров процесса при ПДП

Стабилизация параметров процесса при плазменно-дуговом выращивании монокристаллов может позволить повысить устойчивость процесса, изучить особенности роста кристалла при относительно постоянных внешних условиях, оптимизировать ростовую процедуру, автоматизировать процесс. Для этих целей были разработаны система стабилизации уровня расплава (ССУР) и система стабилизации температуры расплава (ССТР) [8, 9]. ССУР удерживает постоянным расстояние от сопла плазмотрона до вершины мениска расплава, тем самым сохраняет неизменными электрические характеристики дуги и величину теплового потока к кристаллу. При работе ССУР в плоскости проекции изображения ванны расплава устанавливается фотодатчик  $FD_1$ , сигнал от которого, в момент засветки его вершиной мениска расплава, компенсируется подстроечным сигналом от делителя напряжения и после усиления поступает на размыкающее реле в приводе кристаллодержателя. При опускании слитка изображение мениска расплава прекращает засвечивать фотодатчик, вызывая срабатывание реле и прекращение перемещения слитка. ССУР удерживает положение вершины мениска расплава относительно сопла плазмотрона по вертикальной координате с точностью — не хуже  $\pm 50$  мкм.

ССТР используется для поддержания постоянной температуры расплава в фиксированной точке на поверхности ванны расплава. Выбор участка поверхности для стабилизации температуры определяется излучательными характеристиками расплава, слитка,

параметрами ростового процесса — скоростью роста, способом подпитки, величиной подпитывающих порций и т.п. Сигнал от фотодатчика  $FD_2$ , расположенного в плоскости изображения поверхности расплава, и опорный сигнал, задающий значение стабилизируемой эффективной температуры, подаются на вход компаратора и далее — в блок управления током дуги выпрямителя ВД-502-2. Фотодатчик  $FD_2$  калибруется по нагреваемому в электрической дуге образцу из материала изучаемого соединения. При калибровке фотодатчика использовались участки поверхности расплава, нормаль к которым ориентирована близко к направлению на приемник излучения. Регистрируемый сигнал, поступающий от участка поверхности расплава, расположенного рядом с границей  $k_0 - k_0'$  (на расстоянии  $\leq 200$  мкм), принимается соответствующим значением реперной точки — температуры плавления рассматриваемого материала. Получаемая таким образом температура  $T_F$  является “эффективной”, так как к излучению, поступающему от образца, добавлено излучение слоя аргоновой плазмы, обтекающей боковую поверхность образца, которое, по фотометрическим оценкам, может завывать значение регистрируемой температуры по отношению к действительной температуре поверхности расплава: для центральной области образца — на  $\sim 60$  К вблизи границы  $k_0 - k_0'$  и на  $\sim 150$  К вблизи вершины мениска; для краевой области образца — на  $\sim 150$  К.

ССТР работает совместно с ССУР, которая фиксирует по вертикальной координате месторасположение участка поверхности расплава, выбранного для стабилизации температуры. Сохранить распределение температуры в расплаве можно за счет удержания температуры  $T_F$  на определенном уровне  $T_{FS}$  для специально выбранного для стабилизации участка  $F_s$  на поверхности расплава (диаметром  $< 200$  мкм). Такой результат достигается правильным выбором положения площадки  $F_s$  — в этом случае ССТР не только удерживает на заданном уровне температуру в выбранной точке образца, но и способствует сохранению распределения температуры на поверхности расплава, а также высоты мениска и его формы. Положение площадки  $F_s$  определяется расположением фотодатчика  $FD_2$  в плоскости проекции изображения процесса, совпадающим с положением проекции рассматриваемой площадки. Выбор положения фотодатчика  $FD_2$  происходит с учетом особенностей температурного распределения вдоль образца. Эффективность стабилизации параметров процесса также зависит от согласованности действий ССТР и ССУР. ССУР, опуская после каждого цикла подпитки слиток на величину вновь образованного

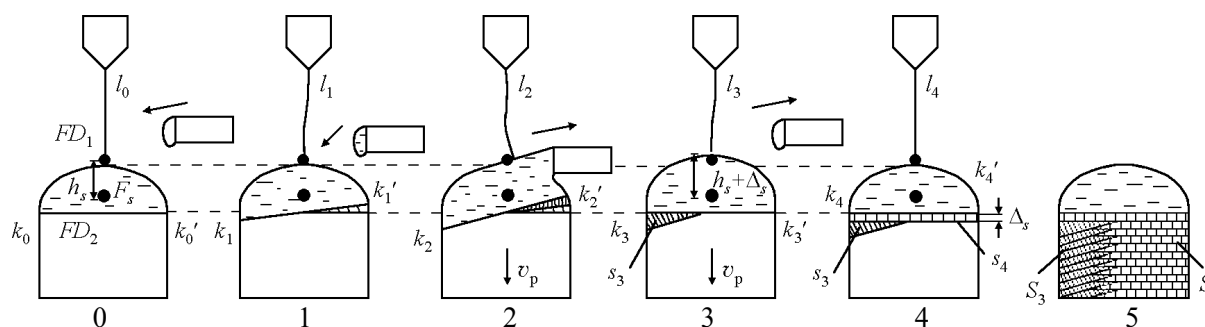


Рис. 3. Образование слоев роста 1 – 4 и слоистая структура слитка 5 при использовании ССТР.

слова, фиксирует по вертикальной координате положение вершины мениска расплава и площадки  $F_s$ , которые находятся друг относительно друга на регулируемом расстоянии  $h_s$ . Изменение горизонтальной координаты площадки  $F_s$  относительно вертикальной оси ванны расплава не происходит, если в процессе роста не нарушается осевая симметрия расплава. Таким образом, в точке, зафиксированной в указанных координатах, ССТР осуществляет стабилизацию температуры поверхности расплава.

На рис. 3 представлены стадии образования слоистой структуры роста слитка при одновременной работе ССТР и ССУР. На стадии подпитки происходит остывание расплава со стороны вводимого стержня. Граница раздела “расплав – кристалл” принимает наклонные положения  $k_1 - k_1'$  и  $k_2 - k_2'$  — поз. 1 и 2 на рис. 3. При этом ССТР повышает мощность дуги, стремясь сохранить температуру для площадки  $F_s$  на заданном уровне  $T_{F_s}$  (рис. 4). При выводе стержня граница раздела занимает новое положение  $k_3 - k_3'$ ; происходит кристаллизация слоя  $s_3$ . Во время паузы ССУР возвращает вершину мениска и ванну расплава в исходное положение, опуская кристаллодержатель со слитком с заданной скоростью  $v_p$  на величину  $\sim \Delta_s$ , соответствующую размеру поступившей порции. При движении слитка вниз (относительное движение участка  $F_s$  при этом происходит вверх) ССТР стабилизирует температуру  $T_F$  площадки  $F_s$  на заданном уровне  $T_{F_s}$ , тем самым, вызывая кристаллизацию расплава и движение границы  $k - k'$  со скоростью  $v_s$  вверх до нового положения  $k_4 - k_4'$ . В итоге месторасположение площадки  $F_s$  относительно вершины мениска изменяется на величину  $\sim \Delta_s$ . Слой слитка  $s_4$ , который образуется при этом, также имеет толщину  $\sim \Delta_s$ . Таким образом, за единичный цикл подпитки происходит кристаллизация слоя  $s_3$  со скоростью  $v_3$  и слоя  $s_4$  со скоростью  $v_s$  (рис. 3, поз.4). Значение  $v_3$  определяется скоростью вывода стержня из плазмы;  $v_s$  — практически совпадает по величине (но противоположно по направлению) со скоростью

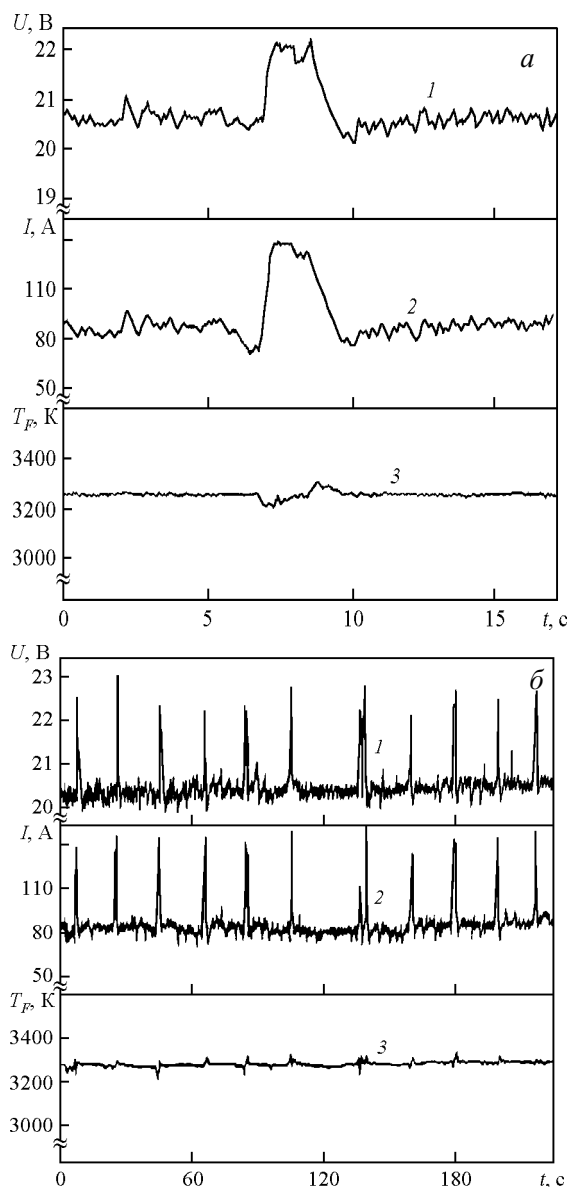


Рис. 4. Напряжение (1), ток дуги (2) и эффективная температура на поверхности расплава TiC (3) при использовании ССТР: а – единичный цикл подпитки; б – ряд циклов подпитки.

опускания кристаллодержателя на стадии паузы —  $v_p$ . Выбор значения  $v_p$  происходит, исходя из длительности паузы —  $t_p$ , таким образом, чтобы удовлетворялось неравенство  $\Delta_s/v_p < t_p$ . При этом, если выбрать  $v_p \approx \Delta_s/t_p$ , то связь скорости роста слоя  $v_s$  со средней скоростью  $v_g$ , с которой происходит вытягивание слитка за полный цикл подпитки (включая паузу), принимает простой вид:  $v_s \approx v_g(t_c/t_p)$ , где  $v_g = \Delta_s/t_c$ ,  $t_c = 1/\nu$  — длительность полного цикла подпитки,  $\nu$  — частота, с которой расплав подпитывается. Как правило,  $1 < (t_c/t_p) < 2$ , поэтому  $v_s \sim (1 \div 2)v_g$ . Скорость образования слоя  $\Delta_s$ , при работе ССТР, наиболее близка к значению средней скорости роста слитка  $v_g$  и значительно меньше скоростей кристаллизации на стадиях ввода стержня в область плазмы и контакта “стержень — расплав”, определяющих реальную скорость кристаллизации слитка в том случае, когда система стабилизации температуры не используется [10]. Структура послойного роста слитка (рис. 3, поз. 5), в общем случае, будет иметь две многослойные области  $S_3$  и  $S_4$ , для которых скорости кристаллизации слоев различны. По данным видеозаписи перемещений границы  $k - k'$  на поверхности образца эти скорости сравнительно невелики:  $v_3 \sim 5$  мм/мин,  $v_s \sim 2v_g \sim 1$  мм/мин, поэтому условия для конкурентного роста зерен и формирования реальной структуры слитка при использовании ССТР оказываются более благоприятными.

Таким образом, ССТР обеспечивает заданный уровень температуры поверхности расплава на стадии паузы и предотвращает неконтролируемый перегрев или захлаживание расплава. ССТР позволяет регулировать параметры стабилизирующих воздействий в широком диапазоне и находить подходящие режимы для различных переплавляемых материалов, обеспечивая как высокую стабильность  $T_F$  на стадии паузы, так и снижение изменений  $T_F$  на стадии подпитки. На рис. 4 приведены осциллограммы параметров дуги и температуры расплава для площадки  $F_s$  при работающей ССТР, полученные во время выращивания монокристалла TiC. Стадия паузы отличается высокой стабильностью температуры  $T_{Fs}$  (ср. с рис.2). Ток и напряжение дуги при работе ССТР совершают довольно значительные колебания на стадии паузы — до  $\pm 5\%$  (мощность дуги —  $\Delta W/W \approx \pm 15\%$ ), обеспечивая заданный уровень  $T_{Fs}$  с точностью порядка  $\pm 0,5\%$ . На стадии подпитки ССТР может значительно увеличить электрическую мощность дуги, например на  $\sim 60 - 70\%$  (рис. 4), при этом максимальные отклонения температуры от  $T_{Fs}$  составляют  $\pm 60$  К ( $\pm 2\%$ ), что в несколько раз ниже колебаний  $T_F$  при выращивании монокристаллов без применения ССТР (ср. с рис. 2). Рис. 4б демонстри-

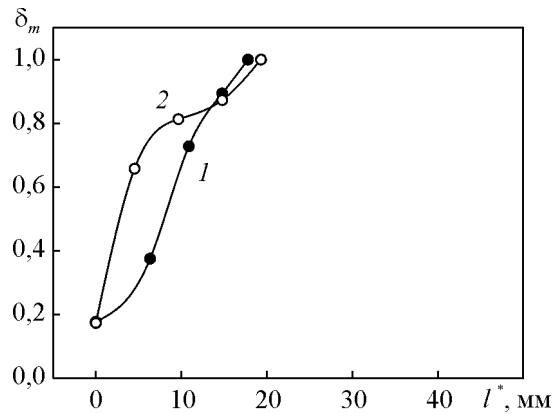


Рис. 5. Рост основного кристаллического блока в слитках TiB<sub>2</sub> (1) и TiC (2) при использовании ССТР.

рует работу ССТР и стабильность  $T_{Fs}$  на протяжении ряда циклов подпитки расплава карбида титана.

На рис. 5 приведены данные по конкурентному росту кристаллических блоков для начальных участков слитков диборида титана и карбида титана, полученные при выращивании монокристаллов от поликристаллических заготовок в условиях стабилизации температуры расплава. Для обоих соединений наблюдается устойчивый и быстрый рост основного кристаллического блока, направление преимущественного роста в котором совпадает с направлением кристаллизации слитка и который постепенно занимает все его поперечное сечение. Длина поликристаллического участка в слитке для TiB<sub>2</sub> составляет  $l_m \approx 17$  мм, для TiC —  $l_m \approx 18$  мм.

### Устойчивость работы системы стабилизации температуры

Важным вопросом при использовании ССТР и ССУР является проблема устойчивости роста монокристаллического слитка [11]. В ростовой системе, включающей в себя и системы стабилизации как составную часть, должен наблюдаться устойчивый рост в результате самостабилизации основных её параметров — диаметра кристалла, высоты мениска, мощности нагрева. Отдельного внимания заслуживает вопрос устойчивой работы самой ССТР. В условиях плазменно-дугового нагрева при капиллярном формообразовании и циклической стержневой подпитке существенную роль в работе ССТР играет выбор месторасположения площадки  $F_s$ . Анализ распределения регистрируемой эффективной температуры  $T_F = T_F(l^*)$  вдоль оси образца позволяет организовать устойчивую работу ССТР. Схематично вид распределения  $T_F = T_F(l^*)$  представлен на рис. 6. Экспериментально распределение  $T_F = T_F(l^*)$  (рис. 7

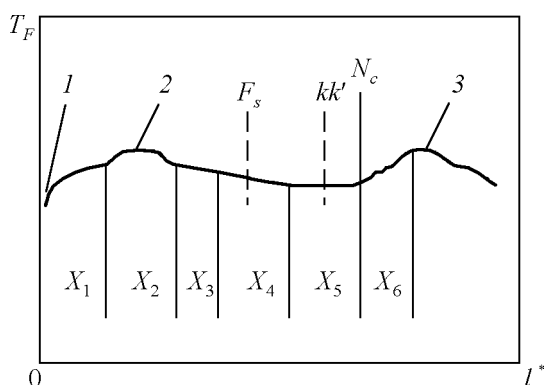


Рис. 6. Распределение температуры  $T_F$  на поверхности расплава вдоль оси слитка: 1 — область анодной привязки дуги, 2 — область “блика” на поверхности расплава, 3 — область налета кристаллитов на слитке;  $N_c$  — граница налета кристаллитов;  $k - k'$  — граница раздела жидкой и твердой фаз;  $X_1 - X_6$  — характерные участки поверхности образца;  $F_s$  — место регистрации сигнала для ССТР.

и 8) было получено при равномерном движении фотодатчика в плоскости проекции изображения образца.

Зависимость на рис. 6 имеет характерный немонотонный вид, который является результатом: во-первых, сильной кривизны мениска и большого угла между нормалью к поверхности и направлением на приемник излучения для верхней области расплава, что дает заниженное значение регистрируемой эффективной температуры по сравнению с фактической температурой поверхности расплава для вершины образца и обуславливает появление на кривой  $T_F = T_F(l^*)$  максимума; во-вторых, наличия особых зон на проецируемом изображении поверхности расплава и кристалла: анодной привязки электрической дуги 1; “блика” 2 — мнимого изображения раскаленной вершины катода, возникающего при отражении от выпуклой поверхности расплава; кольцевого налета на поверхности слитка 3 вблизи фронта кристаллизации в виде колоний мелких кристаллов разветвленного строения, образующихся в результате испарения материала из расплава и его осаждения из плазменного потока на поверхности слитка.

На кривой  $T_F = T_F(l^*)$  (рис. 6) могут быть выделены характерные участки  $X_1, \dots, X_6$  и рассмотрена возможность их выбора для расположения площадки  $F_s$ :

$X_1 (dT_F/dl^* > 0)$  — включает в себя анодное пятно и прилегающую к нему область на вершине мениска расплава;

$X_2 (dT_F/dl^* > 0 \text{ и } dT_F/dl^* < 0)$  — область вблизи максимума температуры на кривой  $T_F = T_F(l^*)$ ,

возникающего в результате конкуренции двух факторов — уменьшением температуры поверхности при удалении от вершины мениска и ростом коэффициента излучения поверхности расплава при уменьшении угла  $\psi$  между проекцией нормали к поверхности расплава на вертикальную плоскость и направлением на приемник излучения. Кроме того, на “естественный” максимум  $T_F$  на участке  $X_2$  накладывается также “блик” 2, усиливающий общий сигнал;

$X_3 (dT_F/dl^* < 0)$  — область расплава, в непосредственной близости от “блика”; при подпитке, из-за искривления мениска, “блик” может смещаться в зону  $X_3$ ;

$X_4 (dT_F/dl^* < 0)$  — область удалена и от “блика”, и от границы  $k - k'$ ;

$X_5 (dT_F/dl^* < 0)$  — включает в себя границу  $k - k'$  и соответствует участку поверхности образца, прилегающему к межфазной границе раздела;

$X_6 (dT_F/dl^* > 0; dT_F/dl^* < 0)$  — область вблизи границы  $N_c$  налета мелких кристаллов на поверхности образца; в процессе роста слитка граница  $N_c$  может вплотную приближаться к  $k - k'$ .

Участки расплава, соответствующие фрагментам  $X_1, X_2, X_3$  не подходят в качестве источников сигнала для ССТР при выборе месторасположения площадки  $F_s$ , так как на стадии подпитки в пределах этих зон возможны значительные искажения формы мениска и температуры расплава, а также перемещение “блика”.

На участке  $X_6$  регистрируемая температура превышает температуру, соответствующую границе раздела фаз (участок  $X_5$ ), так как в этой части образца возрастает коэффициент излучения при увеличении шероховатости поверхности слитка в результате образования мелких кристаллов. За счет этого сигнал, поступающий от площадки  $F_s$ , расположенной в пределах участка  $X_6$  вблизи межфазной границы, может возрастать и на стадии подпитки, и на стадии паузы, так как в направлении границы  $k - k'$  непрерывно происходит распространение границы мелкокристаллического налета. Действия ССТР, в этом случае, будут вызывать неоправданное снижение температуры образца и кристаллизацию ванны расплава, что может приводить к остановке процесса роста слитка.

Участок  $X_5$  также мало пригоден для выбора размещения площадки  $F_s$ . Зачастую вблизи границы  $k - k'$  градиент температуры мал. Например, при глубокой ванне расплава —  $|dT_F/dl^*| < 20$  К/мм (рис. 7). Так как ССТР реагирует только на изменение температуры объекта, то стабилизация пространственного положения границы раздела “расплав — кристалл” при перемещениях  $k - k'$  в пределах зоны

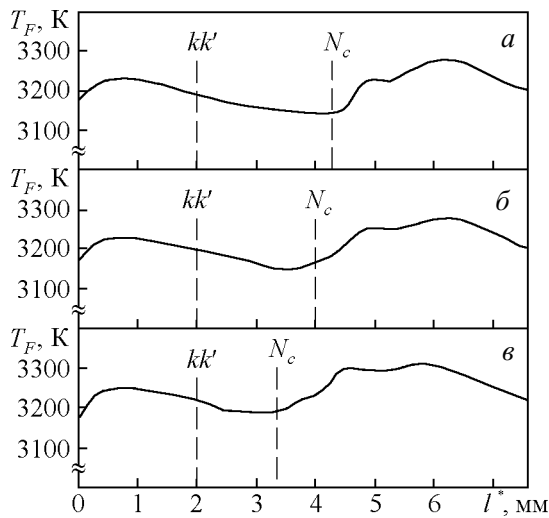


Рис. 7. Эффективная температура поверхности образца  $TiB_2$  вдоль оси в различные моменты времени (линия сканирования смещена относительно оси на 0,5 мм): а –  $t = 0$ ; б –  $t = 18$  с; в –  $t = 30$  с;  $k - k'$  – граница раздела фаз.

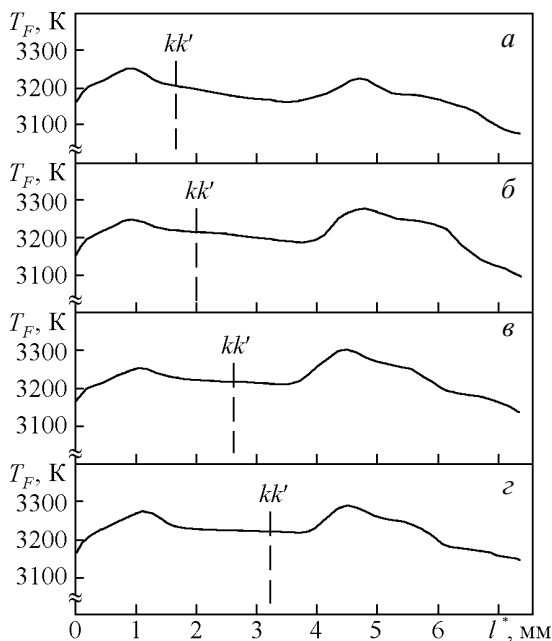


Рис. 8. Эффективная температура поверхности образца  $TiC$  вдоль оси при различной глубине ванны расплава (а – г);  $k - k'$  – граница раздела фаз.

$X_5$  в некотором диапазоне (например,  $\pm 0,5$  мм — для кривых на рис. 8) может быть неудовлетворительной. Кроме того, площадка  $F_s$ , находящаяся во время паузы в зоне  $X_5$ , может на стадии подпитки переместиться в пределы участка  $X_6$  из-за быстрого распространения границы налета  $N_c$  за линию исходного расположения межфазной границы  $k_0 - k_0'$ . Это, как указывалось выше, может вызвать охлаждение

расплава и вынужденную остановку процесса роста слитка из-за действий ССТР.

Участок  $X_4$  наиболее приемлем для месторасположения площадки  $F_s$ . Удаленность  $X_4$  от места локализации “блика”, границы  $k - k'$  и границы налета  $N_c$  предохраняет сигнал, поступающий в ССТР на стадии подпитки, от выбросов, отрицательно влияющих на работу ССТР. Наличие значительного градиента температуры на участке  $X_4$  позволяет заставить стабилизировать не только температуру в выбранной точке расплава, площадке  $F_s$ , но и сохранить исходное расположение межфазной границы  $k - k'$  на стадии паузы, и ограничивает диапазон ее перемещений на стадии подпитки. Таким образом, при выборе места расположения площадки  $F_s$  в пределах зоны  $X_4$  достигается удовлетворительная стабилизация температуры в данной точке расплава; в паузах между циклами подпитки восстанавливается исходная глубина ванны расплава, что и способствует сохранению температурного распределения в расплаве и в прилегающей части слитка.

На рис. 7, 8 представлены фрагменты осциллограмм с распределением эффективной температуры на поверхности расплавов  $TiB_2$  и  $TiC$  в продольном к оси слитка направлении. На оси ординат указана эффективная температура с учетом табличного значения температуры плавления соответствующего соединения, используемая в качестве реперной точки при калибровке фотодатчика, в описанной выше процедуре. Как указывалось ранее, такие распределения включают в себя и поправку, вносимую слоем плазмы, толщина, температура и состав которой изменяются вдоль образца.

Рис. 7 отражает распределение эффективной температуры поверхности образца  $TiB_2$ , вдоль его оси, в разные моменты времени при неизменном положении границы раздела  $k - k'$  (линия перемещения фотодатчика при сканировании соответствует вертикальной линии, смещенной в сторону относительно оси слитка на 0,5 мм). Анализ температурных кривых а – в на рис. 7 обнаруживает перемещение границы налета  $N_c$  за счет соответствующего роста зоны мелкокристаллического налета на поверхности слитка во времени. Оценка скорости распространения налета, полученная из данных по распределению температуры на поверхности образца в разные моменты времени, дает для  $TiB_2$  величину  $\sim 1 - 2$  мм/мин. При средней скорости выращивания слитка менее 1 мм/мин граница мелкокристаллического налета  $N_c$  вплотную приближается к межфазной границе  $k_0 - k_0'$ , оказывая непосредственное влияние на процесс выращивания монокристалла. На стадии собственно подпитки граница  $N_c$ , продолжая перемещаться

вслед за границей  $k - k'$ , заходит за пределы  $k_0 - k_0'$ . На стадии паузы межфазная граница возвращается к положению  $k_0 - k_0'$ , и часть мелкокристаллического налета поглощается расплавом.

На рис. 8 показаны продольные распределения эффективной температуры поверхности образца TiC при различной высоте мениска расплава. Как видно из графиков (рис. 8а – з), при увеличении высоты мениска градиент температуры на поверхности расплава вблизи границы  $k - k'$  уменьшается. Поэтому, если используется ванна расплава с большим перегревом вещества, то есть большей глубины и с большей высотой мениска, то месторасположение площадки  $F_S$  следует выбрать на участке  $X_3$ , достаточно удаленном от границы  $k_0 - k_0'$ , где градиент температуры сможет обеспечить удовлетворительную работу ССТР.

### **Выводы**

Использование специальных систем стабилизации, рассмотренных в данной работе, позволяет повысить устойчивость процесса выращивания тугоплавких монокристаллов карбидов и боридов переходных металлов за счет снижения температурных колебаний и тепловых возмущений расплава в условиях плазменно-дугового нагрева при капиллярном формообразовании и циклической стержневой подпитке. Существенную роль в работе системы стабилизации температуры расплава играет выбор на поверхности расплава месторасположения площадки, с которой производится регистрация температуры. Анализ температурного распределения на поверхности расплава и слитка вдоль оси образца позволяет организовать устойчивую работу системы стабилизации температуры расплава.

### **Литература**

1. Бурханов Г.С., Шишин В.М., Кузьмищев В.А., Сергеев Н.Н., Шнырев Г.Д. Плазменное выращивание тугоплавких монокристаллов. М.: Metallurgy, 1981, 200 с.
2. Лякишев Н.П., Бурханов Г.С. Металлические монокристаллы. М.: ЭЛИЗ, 2002, 312 с.
3. Kinoshita H., Otani S., Kamiyama S., et al. ZrB<sub>2</sub> Substrate for Nitride Semiconductors. Jpn. J. Appl. Phys., 2003, v. 42, p. 2260 – 2264
4. Otani S., Suda A., Kinoshita H. Boride single crystal and substrate for forming semiconductor. Patent JP2003089596, 2003.
5. Otani S., Aizawa T. Carbide single crystal substrate for growing semiconductor crystal. Patent JP2007169083, 2007.
6. Бурханов Г.С. Кристаллизация карбидов и боридов переходных металлов из их расплавов. ЖВХО им. Д.И.Менделеева, 1985, т. 30, № 6, с. 485 – 494.
7. Дементьев В.А., Сдобырев В.В., Пономарев М.А. и др. Плазменное выращивание монокристаллов TiB<sub>2</sub>, ZrB<sub>2</sub>, NbB<sub>2</sub>. В сб.: Высококачественные и монокристаллические материалы. М.: Наука, 1987, с. 71 – 74.
8. Shteinberg A.S., Ponomarev M.A. et al. Growth of Single Crystals of Refractory SHS Products. Internat. Journal of SHS, 1995, v. 4, no. 2, p. 149 – 157.
9. Ponomarev M.A., Sapronov Yu.A. Plasma-arc melting growth stabilization for refractory single crystal preparation from SHS products. Ogneupory i Tekhnicheskaya keramika, 1999, no. 6, p. 16 – 20.
10. Ponomarev M.A., Sapronov Yu.A. Plasma-Arc Growth of Refractory Single Crystals from SHS Products and Green Mixtures. Internat. Journal of SHS, 2009, v. 18, no. 1, p. 51 – 59.
11. Татарченко В.А. Устойчивый рост кристаллов. М.: Наука. Гл.ред. физ.-мат. лит., 1988, 240 с.

*Пономарев Михаил Анатольевич — Институт структурной макрокинетики и проблем материаловедения РАН (ИСМАН), кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник. Специалист в области самораспространяющегося высокотемпературного синтеза, выращивания монокристаллов тугоплавких соединений. E-mail: map@ism.ac.ru.*