

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук

На правах рукописи

АРГУНОВА Татьяна Сергеевна

МИКРОСТРУКТУРА МОНОКРИСТАЛЛОВ КАРБИДА КРЕМНИЯ
ПО ДАННЫМ РЕНТГЕНОВСКОГО
ФАЗОВО-КОНТРАСТНОГО ИЗОБРАЖЕНИЯ
И ТОПОГРАФИИ В СИНХРОТРОННОМ ИЗЛУЧЕНИИ

с п е ц и а л ь н о с т ь

01.04.07 — физика конденсированного состояния

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Санкт-Петербург

2021

Введение	5
1. Обзор литературы	16
1.1 Микропоры в монокристаллах карбида кремния и их свойства	17
1.2 Метод фазово-контрастного изображения на просвет в СИ	27
1.2.1 Принципы метода	27
1.2.2 Распространение и адаптация метода	30
1.2.3 Регистрация фазово-контрастных изображений	33
1.3 Рентгеновская топография в синхротронном излучении	35
1.4 Совместное применение методов	42
1.5 Примеры совместного применения методов	45
1.6 Выводы	52
2. Компьютерное моделирование фазово-контрастных изображений и решение обратной задачи	54
2.1 Розовый пучок	55
2.2 Метод моделирования и компьютерная программа	57
2.3 Задача о микротрубке с малым продольным диаметром	61
2.4 Задача о наклонной микротрубке	65
2.5 Задача о повороте поперечного сечения	70
2.6 Двумерное компьютерное моделирование изображений	73
2.6.1 Образцы для исследования	74
2.6.2 1D-моделирование трубчатой поры	76
2.6.3 2D-моделирование микрокапсулы	77
2.7 Выводы	83

3. Экспериментальные исследования микротрубок в кристаллах SiC методом фазово-контрастного изображения	84
3.1 Морфологические особенности микротрубок	85
3.2 Взаимодействие между дислокационными микротрубками	96
3.2.1 Коррелированное уменьшение диаметров	96
3.2.2 Модель бесконтактной реакции	99
3.2.3 Контактные взаимодействия между микротрубками	102
3.3 Выводы	108
4. Политипная однородность и эволюция дефектной структуры в процессе роста кристаллов SiC	109
4.1 Поры на границах включений инородных политипов	110
4.2 Роль микротрубок в формировании пор на границах включений	114
4.3 Рост пор по механизму поглощения микротрубок	117
4.4 Эволюция дефектов при стабильном росте основного политипа	121
4.5 Кристаллы SiC, полученные методом свободного распространения	132
4.5.1 Строение кристаллов	132
4.5.2 Дислокации и микротрубки	135
4.5.3 Границы разориентации. Щелевидные поры	138
4.5.4 Обсуждение экспериментальных результатов	144
4.6 Выводы	149

5. Карбид кремния как подложка для выращивания кристаллов нитрида алюминия	150
5.1 Структурные свойства GaN и AlN на подложках SiC	151
5.2 Испарение подложки SiC в процессе роста слоя AlN	154
5.3 Исследование дислокационной структуры в AlN/SiC	158
5.3.1 Эксперименты по методу топографии в СИ	158
5.3.2 Наблюдение дислокаций методом топографии	165
5.3.3 Особенности кривых дифракционного отражения	171
5.3.4 Модель релаксации напряжений несоответствия в AlN/SiC	175
5.4 Выводы	180
6. Заключение	181
Список цитируемой литературы	186
Список публикаций по теме диссертации	214

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность темы. Монокристаллические материалы находят широкое применение в различных областях техники. Однако они редко встречаются в природе; поэтому монокристаллы, обладающие технически важными свойствами, получают искусственным путем. Реальные кристаллы содержат дефекты структуры, а также неоднородности с размерами от долей микрометра до нескольких микрометров: поры, включения, микротрещины и области, в которых наблюдается слабое ($\sim 1\%$) изменение плотности по отношению к матрице. Ярким примером образования первичных пор является кристаллизация полупроводникового карбида кремния (SiC), ценные свойства которого — это большая ширина запрещенной зоны, высокие пробивные напряжения и хорошая теплопроводность при исключительной термической стабильности, химической резистивности и радиационной стойкости. Несмотря на то, что качество промышленных кристаллов SiC еще не отвечает самым высоким стандартам, интерес к ним обусловлен потребностью в подложках для приборных структур силовой быстродействующей электроники, СВЧ-электроники, оптоэлектроники, а также для использования их в качестве затравок для получения высококачественных кристаллов нитрида алюминия (AlN) большого диаметра. В настоящее время получение подложек SiC большой площади с низкой плотностью микропор обходится весьма дорого. Для снижения затрат на производство кристаллов, не содержащих микропор, необходимо всестороннее изучение процессов дефектообразования, протекающих при выращивании карбида кремния методом сублимации.

Долгое время одним главным методом изображения дефектов в кристаллах была рентгеновская дифракционная топография. Резкое изменение наступило в середине 1990-х гг. с появлением сразу нескольких методов регистрации рентгеновских фазово-контрастных изображений. В данной работе речь идет о методе фазово-контрастного изображения объектов на просвет в синхротронном излучении (СИ). Его особенность состоит в том, что контраст можно наблюдать только в условиях высокой пространственной и временной когерентности, которую обеспечивают источники СИ третьего поколения.

Совместное применение методов топографии и фазово-контрастного изоб-

ражения позволяет изучать структурные дефекты различной природы без разрушения образца. Однако экспериментальные методы обеспечивают количественную информацию только при использовании теоретических методов решения обратной задачи. Комплексное исследование кристаллов SiC неразрушающими рентгеновскими методами с целью получения количественной информации об их микроструктуре способствует выполнению важной задачи освоения отечественного производства подложек для электронных приборов нового поколения.

Цель работы. Целью работы является исследование процессов образования и эволюции микропор и дефектов кристаллической структуры в монокристаллах карбида кремния путем количественного анализа фазово-контрастных изображений, полученных в жестком синхротронном излучении, и рентгеновских топограмм.

Задачи работы: поиск условий визуализации микропор в монокристаллах методом фазово-контрастного изображения с использованием источников СИ умеренной яркости; разработка метода определения количественных параметров микротрубок путем моделирования фазово-контрастных изображений; анализ точности определения параметров новым методом; рассмотрение пределов применимости метода; изучение свойств микропор и дефектов структуры в условиях стабилизации политипа карбида кремния при выращивании кристаллов методом сублимации и его новой модификацией — методом „свободного распространения“; исследование типа дислокационной структуры вблизи интерфейса между подложкой карбида кремния и слоем нитрида алюминия.

Научная новизна. В диссертации впервые получены следующие результаты.

1. Разработан метод компьютерного моделирования фазово-контрастных изображений для определения размеров сечений микропор в объеме монокристалла. Метод позволяет использовать пучок СИ с относительно большой шириной спектра наряду с монохроматическим излучением.

2. Путем моделирования изображений дислокационных микротрубок в монокристаллах карбида кремния выявлены неизвестные ранее морфологические особенности, в частности изменения формы и размеров их сечений, которые получили объяснение в построении моделей образования трубок и реакций между содержащимися в них дислокациями.
3. Обнаружен эффект образования пор на границах включений инородных политипов SiC в результате притяжения микротрубок к границам включений. Эффект объяснен взаимодействием поля упругой деформации включения с дислокациями внутри трубок. Показано, что в условиях устойчивого роста основного политипа SiC происходит закрытие пор и снижение плотности дефектов кристаллической структуры.
4. Установлено, что процессы эволюции дислокаций в политипно-однородных кристаллах SiC протекают при взаимодействии микротрубок между собой и с дислокациями со сплошным ядром; уменьшение размеров сечений в результате реакций приводит к постепенному зарастанию микротрубок.
5. Определены условия получения качественных кристаллов SiC методом свободного распространения за пределы контура кристалла-затравки в условиях осевого и бокового градиентов температуры. Показано, что снижение плотности дислокаций и микротрубок за пределами сектора грани базиса происходит при условии отсутствия включений паразитных политипов.
6. Рентгеновскими исследованиями специальных модельных систем — слоев нитрида алюминия без опоры на подложки, полученных испарением подложки карбида кремния, — установлено, что в результате релаксации напряжений несоответствия периодов решеток AlN и SiC формируется мозаичная дислокационная структура, для которой характерны разориентация ($\sim 1\text{--}2$ угл. мин.) и менее заметная деформация ($\sim 5 \times 10^{-4}$). Принципиальное отличие слоев AlN от пленок GaN состоит в снижении плотности прорастающих дислокаций на 4–5 порядков, обусловленном тем, что островковый механизм роста AlN на подложках SiC не является основным.

Научная и практическая значимость. Визуализация микропор в объеме монокристалла без разрушения образца, которая продемонстрирована и обоснована в данной работе, открывает новые возможности изучения материалов. В тех случаях, когда изменение поглощения рентгеновских лучей, вызванное микропорой, ничтожно мало, а изменение деформации кристаллической решетки не проявляется на рентгеновской топограмме или не поддается однозначной интерпретации, на некотором расстоянии от образца сдвиг фазы приводит к неоднородному распределению интенсивности, которое можно измерить. В большинстве опубликованных работ обратная задача не решалась, и фазово-контрастные изображения использовались лишь для наблюдения за внутренним строением материалов. В настоящей работе предложен метод решения обратной задачи путем моделирования изображений, который может быть использован как для монохроматического излучения, так и в широком спектре СИ. Сочетание микроскопического масштаба объектов наблюдения, количественной информации и неразрушающего характера исследования позволяет заключить, что разработанный подход дает существенный вклад в развитие методов исследования реальной структуры кристаллов. Объяснения экспериментально наблюдаемых эффектов, полученные благодаря совместному применению методов регистрации фазово-контрастных изображений и дифракционных топограмм, способствуют пониманию процессов, протекающих в реальных кристаллах, и могут быть использованы для развития технологий получения совершенных кристаллов карбида кремния.

Достоверность и надежность экспериментальных результатов обеспечена использованием самого современного оборудования и корректных методов решения поставленных задач. Правильность выводов вытекает из сопоставления теории с экспериментом. С другой стороны, физическая обоснованность теоретических оценок и моделей подтверждается соответствием экспериментальным наблюдениям.

Апробация работы. Полученные в работе результаты докладывались на следующих международных и всероссийских конференциях и симпозиумах:

- 1) International summer school-conference „Advanced Problems in Mechanics“,

- APM: (2017, 2015, 2014, 2010, 2004, 2003), St. Petersburg, Russia.
- 2) Петербургские чтения по проблемам прочности: XXIII (2018), XXI (2014), XVIII (2010, 2008), XVII (2007), XVI (2006), XV (2005), XIII (2003), С.-Петербург, Россия.
 - 3) XV International conference „Intergranular and interphase boundaries in materials“: 2016, Moscow, Russia.
 - 4) 12th International Conference on „Synchrotron Radiation Instrumentation“, SRI: 2015, New York, USA.
 - 5) European conferences „Silicon Carbide and Related Materials“, ECSCRM: 11th (2016) Halkidiki, Greece; 10th (2014) Grenoble, France; 9th (2012) St. Petersburg, Russia.
 - 6) International conference „Silicon Carbide and Related Materials“, ECSCRM: 16th (2015) Giardini Naxos, Italy; 10th (2003) Lyon, France.
 - 7) Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Topography (Imaging), XTOP: 11th (2012) St. Petersburg; 9th (2008) Linz, Austria; 8th (2006) Baden-Baden, Germany; 6th (2002) Grenoble, France; 5th (2000) Jaszowiec, Poland.
 - 8) Национальные конференции „Рентгеновское, синхротронное излучения, нейтроны и электроны для исследования наносистем и материалов“, РСНЭ: (2011, 2009, 2007, 2003), Москва, Россия.
 - 9) Научные семинары-школы с международным участием „Современные методы анализа дифракционных данных“: (2006, 2004), Великий Новгород, Россия.
 - 10) International conference „Experimental and computing methods in high resolution diffraction applied for structure characterization of modern materials“, HREDAMM: 2004, Zakopane, Poland.
 - 11) International conference „Extended defects in semiconductors“, EDS: (2008) Poitiers, France; (2006) Halle, Germany.
 - 12) International conference „Defects in semiconductors“: (2013, 2009), St. Petersburg, Russia.
 - 13) Всероссийская конференция по физике полупроводников: 2013, С.-Петербург, Россия.

- 14) Всероссийская конференция „Рентгеновская оптика“: 2014, г. Черноголовка, Московской области.
- 15) National conference „Meeting of Korean Synchrotron User Association“: (2016, 2015) Pohang city, Republic of Korea.

Основные положения, представленные к защите

- Экспериментально доказано и теоретически обосновано, что метод рентгеновского фазового контраста с использованием синхротронного излучения позволяет получать изображения микропор в объеме монокристаллов (например, карбида кремния) с субмикронными размерами поперечного сечения.
- Компьютерное моделирование фазово-контрастных изображений позволяет определять размеры сечений микропор; при этом диаметры эллиптического сечения микротрубок получаются из совпадения расчетных кривых с экспериментальными кривыми распределения интенсивности, измеренными как в монохроматическом излучении, так и в розовом пучке с относительно большой шириной спектра.
- В растущих монокристаллах карбида кремния дислокационные микротрубки упруго взаимодействуют друг с другом и вступают в реакции, которые происходят как при непосредственном контакте их свободных поверхностей, так и бесконтактным образом. Эффекты взаимодействия состоят в уменьшении размеров сечений и постепенном зарастании микротрубок.
- Зарождение включений инородных политипов в растущем кристалле карбида кремния сопровождается формированием пор из дислокационных микротрубок, которые притягиваются к границам включений, накапливаются и группируются на границах под влиянием поля упругой деформации включения. Поры, образовавшиеся в результате слияния микротрубок, продолжают свой рост вместе с включениями, поглощая новые микротрубки. Зарастание включений приводит к полному закрытию пор.

Публикации. По теме диссертации опубликовано 40 научных работ, в том числе:

- 37 научных статей в отечественных и зарубежных журналах;
- 3 главы в книгах открытого доступа, размещенных в интернет.

Основные положения диссертации опубликованы в следующих работах

1. Т. С. Аргунова, В. Г. Кон. Исследование микропор в монокристаллах методом фазово-контрастного изображения на просвет в синхротронном излучении // УФН. 2019. Т. 189. N. 6. С. 643–658;
T. S. Argunova, V. G. Kohn. Study of micropores in single crystals by in-line phase contrast imaging with synchrotron radiation // Physics – Uspekhi. 2019. V. 62. N. 6. P. 602–616. DOI: 10.3367/UFNe.2018.06.038371
2. V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Microvoids in solids: SR phase contrast imaging and simulations // Phys. Status Solidi B. 2018. V. 255. N. 9. P. 1800209(1–7). DOI: 10.1002/pssb.201800209
3. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, J. H. Je, A. E. Kalmykov, O. P. Kazarova, E. N. Mokhov, K. N. Mikaelyan, A. V. Myasoedov, L. M. Sorokin, K. D. Shcherbachev. Distribution of dislocations near the interface in AlN crystals grown on evaporated SiC substrates // Crystals. 2017. V. 7. P. 163–175. DOI: 10.3390/cryst7060163
4. E. N. Mokhov, T. S. Argunova, J. H. Je, O. P. Kazarova, K. D. Shcherbachev. Freestanding single crystal AlN layers grown using SiC substrate evaporation method // CrystEngComm. 2017. V. 19. P. 3192–3197. DOI: 10.1039/C7CE00569E
5. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, K. D. Shcherbachev, S. S. Nagalyuk, O. P. Kazarova, E. N. Mokhov, J. H. Je. Thermal and lattice misfit stress relaxation in growing AlN crystal with simultaneous evaporation of SiC Substrate // Mater. Sci. Forum. 2017. V. 897. P. 711–714.
DOI:10.4028/www.scientific.net/MSF.897.711
6. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, K. D. Shcherbachev, J. H. Je, J.-H. Lim, O. P. Kazarova, E. N. Mokhov. Microstructure and strength of AlN-SiC interface studied by synchrotron X-rays // J. Mater. Sci. 2017. V. 52. N. 8. P. 4244–4252. DOI:10.1007/s10853-016-0679-9

7. Т. С. Аргунова, В. Г. Кон, Дж.-Х. Лим, Дж. Х. Дже. Исследование макродефекта в монокристалле карбида кремния методом рентгеновского фазового контраста // Кристаллография. 2016. Т. 61. N. 6. С. 879–882;
T. S. Argunova, V. G. Kohn, J. H. Lim, J. H. Je. Study of a macrodefect in a silicon carbide single crystal by means of x-ray phase contrast // Crystallogr. Rep. 2016. V. 61. N. 6. P. 914–917. DOI: 10.1134/S1063774516040027
8. Т. С. Аргунова, М. Ю. Гуткин, Е. Н. Мохов, О. П. Казарова, J.-H. Lim, М. П. Щеглов. Предотвращение растрескивания кристаллов AlN на подложках SiC путем испарения подложек // ФТТ. 2015. Т. 57. N. 12. С. 2400–2404;
T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, E. N. Mokhov, O. P. Kazarova, J.-H. Lim, M. P. Scheglov. Prevention of AlN crystal from cracking on SiC substrates by evaporation of the substrates // Phys. Solid State. 2015. V. 57. N. 12. P. 2473–2478. DOI: 10.1134/S1063783415120057
9. Т. С. Аргунова, М. Ю. Гуткин, В. Г. Кон, Е. Н. Мохов. Механизмы формирования морфологических особенностей микротрубок в объемных кристаллах карбида кремния. // ФТТ. 2015. Т. 57. N. 4. С. 733–740;
T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, V. G. Kohn, E. N. Mokhov. Mechanisms of the formation of morphological features of micropipes in bulk crystals of silicon carbide. // Phys. Solid State. 2015. V. 57. N. 4. P. 752–759. DOI: 10.1134/S1063783415040058
10. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, O. P. Kazarova, E. N. Mokhov, S. S. Nagalyuk, J. H. Je. Synchrotron x-ray study on crack prevention in AlN crystals grown on gradually decomposing SiC substrates // Mater. Sci. Forum. 2015. V. 821–823. P. 1011–1014. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.821-823.1011
11. V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Capsule-like voids in SiC single crystal: Phase contrast imaging and computer simulations // AIP Advances. 2014. V. 4. N. 9. P. 097134(1–7).
12. T. S. Argunova, V. G. Kohn, M. Yu. Gutkin, J. H. Lim, J. H. Je. Pink beam far-field imaging of micropipes and voids in SiC: a quantitative approach // In: Microscopy: advances in scientific research and education. P. 955–964. Badajoz, Spain: Formatex Research Center, 2014.
13. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, J. H. Je, J. H. Lim, E. N. Mokhov, A. D. Roenkov. Structural transformation of lattice defects in free-spreading growth of bulk SiC crystals // CrystEngComm. 2014. V. 16. P. 8917–8923.

14. V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Quantitative hard X-ray phase contrast imaging of micropipes in SiC // *AIP Advances*. 2013. V. 3. P. 122109(1–11).
15. A. G. Sheinerman, M. Yu. Gutkin, T. S. Argunova, E. N. Mokhov, S. N. Nagalyuk, J. H. Je. Contact-free micropipe reactions in silicon carbide // *Mater. Sci. Forum*. 2013. V. 740–742. P. 597–600.
DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.740-742.597
16. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, J. H. Je, V. G. Kohn, E. N. Mokhov. Characterization of defects evolution in bulk SiC by synchrotron x-ray imaging // In: *Physics and Technology of Silicon Carbide Devices*. P. 27–45. Croatia: Intech, 2013. 402 P. DOI: 10.5772/52058
17. В. Г. Кон, Т. С. Аргунова, J. H. Je. О причине смены контраста на изображениях микротрубок в SiC с помощью синхротронного излучения // *Поверхность*. 2012. N. 10. P. 60–65.
V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. On the cause of a contrast change in the SR images of micropipes in SiC // *J. Surf. Investig.* 2012. V. 6. N. 5. P. 840–844.
DOI: 10.1134/S1027451012100072
18. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, V. G. Kohn, T. S. Argunova, M. A. Smirnov, J. H. Je. Contact-free reactions between micropipes in bulk SiC growth // *Phys. Status Solidi A*. 2012. V. 209. N. 8. P. 1432–1437. DOI: 10.1002/pssa.201127682
19. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, J. H. Je, E. N. Mokhov, S. S. Nagalyuk, Y. Hwu. SR phase contrast imaging to address the evolution of defects during SiC growth // *Phys. Status Solidi A*. 2011. V. 208. N. 4. P. 819–824. DOI: 10.1002/pssa.201026341
20. M. Yu. Gutkin, T. S. Argunova, V. G. Kohn, A. G. Sheinerman, J. H. Je. Micropipe Reactions in Bulk SiC Growth // In: *Silicon Carbide. Materials, processing and applications in electronic devices*. P. 187–206. Croatia: Intech, 2011. 546 P. DOI: 10.5772/23575
21. В. Г. Кон, Т. С. Аргунова, J. H. Je. Особенности фазово-контрастных изображений микротрубок в SiC в белом пучке синхротронного излучения // *Поверхность*. 2011. N. 1. С. 5–10.
V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Features in phase contrast images of micropipes in SiC in white synchrotron radiation beam // *J. Surf. Investig.* 2011. V. 5. N. 1. P. 1–6. DOI: 10.1134/S1027451011010125
22. V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Far-field X-ray phase contrast imaging has no detailed information on the object // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2010.

- V. 43. N. 44. P. 442002(1–3). DOI: 10.1088/0022-3727/43/44/442002
23. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, M. A. Smirnov, T. S. Argunova, J. H. Je, S. S. Nagalyuk, E. N. Mokhov. Micropipe absorption mechanism of pore growth at foreign polytype boundaries in SiC crystals // *J. Appl. Phys.* 2009. V. 106. N. 12. P. 123515(1–7). DOI: 10.1063/1.3266677
24. T. Argunova, V. Kohn, J-W. Jung, J-H. Je. Elliptical micropipes in SiC revealed by computer simulating phase contrast images // *Phys. Status Solidi A.* 2009. V. 206. N. 8. P. 1833–1837. DOI: 10.1002/pssa.200881609
25. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova. Micropipes in silicon carbide crystals // *Phys. Status Solidi C.* 2009. V. 6. N. 8. P. 1942–1947. DOI: 10.1002/pssc.200881454
26. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, M. A. Smirnov, V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je, and J. W. Jung. Correlated reduction in micropipe cross sections in SiC growth // *Appl. Phys. Lett.* 2008. V. 93. N. 15. P. 151905(1–3). DOI: 10.1063/1.2998572
27. Т. С. Аргунова, В. Г. Кohn, J. H. Je. Компьютерное моделирование фазово-контрастных изображений в белом синхротронном излучении на примере микротрубок в карбиде кремния // *Поверхность.* 2008. N. 12. С. 48–53.
T. S. Argunova, V. G. Kohn, J. H. Je. Computer simulation of phase-contrast images in white synchrotron radiation using micropipes in silicon carbide // *J. Synch. Investig.* 2008. V. 2. N. 6. P. 861–865. DOI: 10.1134/S1027451008060062
28. V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Study of micropipe structure in SiC by x-ray phase contrast imaging // *Appl. Phys. Lett.* 2007. V. 91. N. 17. P. 171901(1–3). DOI: 10.1063/1.2801355
29. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, J. M. Yi, J. H. Je, S. S. Nagalyuk, E. N. Mokhov, G. Margaritondo, Y. Hwu. Role of micropipes in the formation of pores at foreign polytype boundaries in SiC crystals // *Phys. Rev. B.* 2007. V. 76. P. 064117(1–9). DOI: 10.1103/PhysRevB.76.064117
30. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, J. M. Yi, M. U. Kim, J. H. Je, S. S. Nagalyuk, E. N. Mokhov, G. Margaritondo, Y. Hwu. Interaction of micropipes with foreign polytype inclusions in SiC // *J. Appl. Phys.* 2006. V. 100. N. 9. P. 093518(1–10). DOI: 10.1063/1.2359686
31. Т. С. Аргунова, М. Ю. Гуткин, А. Г. Шейнерман, Е. Н. Мохов, J. H. Je, Y. Hwu. Исследование взаимодействия дислокационных микротру-

- бок в монокристаллах SiC методом синхротронной фазовой радиографии // Поверхность. 2005. N. 8. P. 59–66.
32. J. M. Yi, S. K. Seol, J. H. Je, T. S. Argunova, Y. Hwu, W-L. Tsai. White beam Laue topography using a scintillator-CCD combination // Nucl. Instrum. Meth. A. 2005. V. 551. N. 1. P. 152–156. DOI: 10.1016/j.nima.2005.07.049
 33. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, E. N. Mokhov. Micropipes in crystals: experimental characterization, theoretical modeling and computer simulation // Proc. SPIE. 2005. V. 5831. P. 125–138. DOI: 10.1117/12.619538
 34. T. S. Argunova, L. M. Sorokin, L. S. Kostina, J. H. Je, M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman. The use of the diffraction and phase x-ray contrast in study of materials // Crystallogr. Rep. 2004. V. 49. N. 1. P. S33–S39.
 35. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, E. N. Mokhov, J. H. Je, Y. Hwu, W-L. Tsai. Structural Transformation of Dislocated Micropipes in Silicon Carbide // Mater. Sci. Forum. 2004. V. 457–460. P. 367–370. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.457-460.367
 36. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, E. N. Mokhov, J. H. Je, Y. Hwu, W-L. Tsai, G. Margaritondo. Synchrotron radiographic study and computer simulation of reactions between micropipes in silicon carbide // J. Appl. Phys. 2003. V. 94. N. 11. P. 7076–7082. DOI: 10.1063/1.1624481
 37. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, E. N. Mokhov, J. H. Je, Y. Hwu, W-L. Tsai, G. Margaritondo. Micropipe evolution in silicon carbide // Appl. Phys. Lett. 2003. V. 83. N. 11. P. 2157–2159. DOI: 10.1063/1.1609038
 38. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, J. H. Je, H. S. Kang, Y. Hwu, W-L. Tsai, G. Margaritondo. Synchrotron radiography and X-ray topography studies of hexagonal habitus SiC bulk crystals // J. Mater. Res. 2002. V. 17. N. 10. P. 2705–2711. DOI: 10.1557/JMR.2002.0391
 39. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, J. H. Je, H. S. Kang, Y. Hwu, W-L. Tsai. Ramification of micropipes in SiC crystals // J. Appl. Phys. 2002. V. 92. N. 2. P. 889–894. DOI: 10.1063/1.1488247
 40. S. Milita, R. Madar, J. Baruchel, M. Anikin, T. Argunova. Coherent X-ray imaging investigation of macrodefects and micropipes on SiC // Mater. Sci. Eng. B. 1999. V. 61–62. P. 63–57. DOI: 10.1016/S0921-5107(98)00446-2

1. Обзор литературы

Аннотация.

В настоящее время монокристаллы карбида кремния (SiC) используются в качестве подложек для создания высокочастотных и силовых электронных приборов, способных работать в экстремальных условиях [1,2]. Среди требований, предъявляемых к подложкам, следует отметить низкую плотность микропор: $< 0.1 - 5 \text{ см}^{-2}$ [3], которые возникают в процессе роста монокристаллов при определенных физико-химических условиях. В первом разделе данного обзора описаны природа и свойства микропор. В частности, приведены литературные данные о моделях формирования дислокационных микротрубок, которые представляют большую угрозу для работы приборов на основе SiC. На конкретных примерах показаны ограничения традиционных методов, используемых для изучения микропор в SiC. Поставлены вопросы, оставшиеся без ответа после изучения микротрубок традиционными методами.

Во втором разделе представлен относительно новый метод, с помощью которого можно получать довольно полную картину с изображением микропор внутри материала без разрушения образца. Этот метод не относится к рутинным инструментам диагностики, но он имеет большой потенциал для исследования почти совершенных кристаллов. Речь идет о фазово-контрастном изображении прозрачных объектов на просвет в синхротронном излучении. Метод был предложен в середине 1990-х гг. наряду с другими способами регистрации фазово-контрастных изображений [4-7]. Описаны принципы метода, быстрое распространение и рост его популярности в мире. Условия адаптации метода к современным источникам синхротронного излучения (СИ) умеренной яркости рассмотрены на примере национальных научных центров в Юго-Восточной Азии.

Третий раздел посвящен методу рентгеновской топографии. Сообщаются сведения о тех изменениях в типе и процедуре эксперимента, которые принципиально отличают топографию в синхротронном излучении от ее лабораторного прототипа.

В четвертом разделе описано совместное применение методов регистрации фазово-контрастных и рентгено топографических изображений в процессе одного эксперимента. Сравнительный анализ возможностей рентгеновских детекторов изложен так, чтобы продемонстрировать современные тенденции в получении изображений обоих типов. Представлена схема эксперимента, использованная в данной работе. В завершение раздела приведены примеры, показывающие область применения методов.

1.1 Микропоры в монокристаллах карбида кремния и их свойства

Для монокристаллов различных соединений характерны поры, которые возникают одновременно с формированием кристаллической решетки. Поры в виде трубок с сечениями микро- и нанометровых размеров были обнаружены в карбиде кремния (SiC) [8], ферритах-гранатах [9], оксиде Y-Ba-Cu [10] и нитриде галлия [11,12]. Ярким примером образования первичных пор является кристаллизация карбида кремния.

Известно, что кристаллы растут с легко измеримой скоростью уже при пересыщениях около 1%. В то же время вероятность образования двумерных зародышей в единицу времени на единице площади плотной грани достигает заметного значения лишь для пересыщений около 50% [13]. Выход из этого противоречия между экспериментом и теорией был в 1949 г. предложен Франком, указавшим, что пересекающая поверхность винтовая дислокация создает на ней ступень, не исчезающую в процессе роста [14]. Рост на дислокациях может идти при любых пересыщениях, в том числе и малых.

Монокристаллы SiC при малых пересыщениях растут путем формирования спиралей, порожденных винтовыми дислокациями. Высота ступеньки спирали равна целому числу размеров элементарной ячейки данного поли-типа SiC в направлении оси дислокации. На поверхности синтезированных кристаллов в самом центре больших спиралей находится пустота, которая, согласно теории Франка [15], образуется в наиболее деформированной области вокруг ядра дислокации с большим вектором Бюргерса $b > 1$ нм. Радиус такой микротрубки r пропорционален квадрату вектора Бюргерса b :

$$r = \frac{Gb^2}{8\pi^2\gamma}, \quad (1)$$

где γ – удельная энергия свободной поверхности кристалла, и G – модуль сдвига в приближении изотропии.

Метод выращивания искусственных монокристаллов SiC путем химического осаждения паров — метод Лели — был широко известен с середины прошлого века [16]. В 1970–80-х годах появились модифицированные процессы, в которых рост объемного кристалла на затравке происходил в графитовых тиглях: методы сублимации [17,18]. Необходимость получения полупроводникового карбида кремния для электронной техники привела к промышленному

производству слитков большого диаметра. В первое время плотность распределения пор в коммерческих кристаллах была высокой: $\geq 10^5 \text{ см}^{-2}$ [19]. Поры представляли большую угрозу для работы приборов на основе SiC. В частности, было установлено, что микротрубки (МТ) обладали способностью прорастать из кристалла-затравки в объем растущего кристалла. Изучение природы и свойств МТ в SiC стало актуальной проблемой.

Справедливость формулы Франка (1) неоднократно проверялась разными методами и даже сразу несколькими методами, как, например, в работе [20]. Авторы исследовали МТ в кристалле 6H-SiC методами фазово-контрастной оптической микроскопии, оптической интерферометрии и рентгеновской топографии. Было получено довольно плохое соответствие между диаметром отверстия на поверхности образца и диаметром трубки в объеме кристалла, а также между высотой ступеньки спирали на поверхности и величиной вектора Бюргерса винтовой дислокации в объеме образца. По мнению авторов [20], расхождения были, в частности, вызваны большой угловой расходимостью коллимированного пучка от рентгеновской трубки.

Подтверждение формулы Франка было получено методом топографии в синхротронном излучении (СИ) [21]. Путем моделирования ориентационного контраста рентгенотопографических изображений супердислокаций, параллельных оси [0001], были рассчитаны величина и ориентация векторов Бюргерса супердислокаций. Они оказались равны $2 - 7c$, где c – параметр элементарной ячейки политипа SiC, и направлены вдоль линий дислокаций. Радиусы r отверстия в центре дислокационных спиралей, измеренные методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ), изменялись от 0.05 микрометра до нескольких микрометров. Для единичной МТ вектор Бюргерса b и радиус r удовлетворяли соотношению $r \sim b^2$. При этом значения γ/G принадлежали интервалу $1.1 \times 10^{-3} - 1.6 \times 10^{-3}$. Отметим, однако, что в то же время (в конце 1990-х гг.) МТ были описаны другими авторами как супердислокации смешанного типа [22, 23].

В принципе, дислокация с большим вектором Бюргерса b кратным размеру элементарной ячейки, то есть $b = nc$, энергетически невыгодна по сравнению с распределением n элементарных дислокаций с вектором Бюргерса $b = c$. Таким образом, если супердислокация винтового типа с вектором Бюргерса

n зародится в кристалле, она будет стремиться диссоциировать на n отдельных единичных дислокаций s . Тем не менее, супердислокации легко образуются в растущих кристаллах SiC, и их стабильность подтверждена экспериментально. Эти наблюдения долгое время оставались непонятными. Вопросы о том, как элементарные дислокации одного и того же знака объединяются между собой и почему винтовые супердислокации стабильны, не получали удовлетворительных ответов.

Это привело к разработке многочисленных моделей. Обобщая их, можно сказать, что массовое зарождение дислокационных МТ связано с другими дефектами структуры, присутствующими в кристалле. Включения второй фазы — в частности, углерод или кремний — могут вызвать зарождение МТ [24–26]. Кинетические процессы на начальных стадиях формирования кристалла, а именно: фасетированный рост, срастание дендритных отростков, распространение ростовых макроступеней и их остановка на включениях второй фазы [27], появление и распространение пустот [28, 29], могут привести к зарождению МТ. Взаимодействие между спиральными ступеньками винтовых дислокаций [29], между центрами зародышеобразования [30], между включениями и дефектами упаковки [31, 32], а также кластеризация последних [22] могут стать причинами появления МТ.

По мере совершенствования методов выращивания монокристаллов SiC диаметр слитков увеличивался до величин ≥ 100 мм, а количество структурных дефектов в них уменьшалось [33–36]. В 2007-м году американская компания Cree Inc., мировой лидер в производстве монокристаллического карбида кремния, объявила о выдающемся результате. В Cree Inc. были получены подложки SiC n -типа диаметром 100 мм не содержавшие ни одной МТ. Этому событию способствовали обширные исследования, проведенные в лабораториях разных стран.

Сопоставление результатов опубликованных исследований позволяет выявить отдельные противоречия в объяснении природы и свойств дислокационных МТ в SiC. Во-первых, заметен большой разброс значений удельной энергии свободной поверхности кристалла γ у тех авторов, которые проверяли справедливость формулы Франка (1). Во-вторых, в одной из ранних работ было отмечено, что дислокации способны превратиться в МТ под влиянием

изменения условий роста [37], в частности, температуры и давления. Это еще больше усиливает мнение о том, что формирование МТ в значительной мере определяется кинетикой процессов зарождения и взаимодействия дефектов, а не термодинамикой Франка. В-третьих, разные исследователи, применившие, с одной стороны, метод топографии, а с другой — просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), разошлись во мнениях о типе дислокаций внутри трубок [21, 23].

Тем не менее, они были единодушны в том, что МТ имеет форму цилиндра, радиус которого постоянен вдоль ее оси. Так ли это на самом деле? В ходе дальнейшего изложения показано (см. главу 3), что морфология МТ может изменяться в процессе роста кристалла. Неизвестные ранее морфологические особенности, выявленные методом фазово-контрастного изображения, продемонстрировали неустойчивость цилиндрической формы МТ. Для их объяснения в данной работе предложена новая модель превращения дислокаций в МТ.

Покажем на примерах, что ни один из традиционных методов изучения МТ в кристаллах SiC — оптическая микроскопия, рентгеновская топография и СЭМ, — не дает возможности наблюдать на микроуровне за морфологией этих дефектов. На Рис. 1 показаны изображения, полученные разными методами. На рентгеновской топограмме (рис. 1, *a*) МТ видны благодаря своей дислокационной природе [38]. Округлые изображения соответствуют винтовым супердислокациям, линии которых перпендикулярны поверхности образца. Линии слабого контраста, соединяющие округлые изображения, — это дислокации базисной плоскости. Метод СЭМ выявляет ямки гексагональной формы (рис. 1, *b*). Они расположены там, где МТ пересекают поверхность пластины SiC (0001), подвергнутой химическому травлению в расплаве гидроксида калия (КОН). Заметно, что ямка не отражает морфологию трубки в объеме образца. Другое СЭМ-изображение демонстрирует рельеф на грани базиса, который формируется при слоисто-спиральном росте кристалла (рис. 1, *c*). Наконец, на оптической микрофотографии пластины SiC (рис. 1, *d*), поверхность которой параллельна оси роста кристалла, можно видеть трубки, которые начинаются вблизи горизонтальных границ и распространяются вдоль направления роста, обозначенного стрелкой, обращенной вверх.

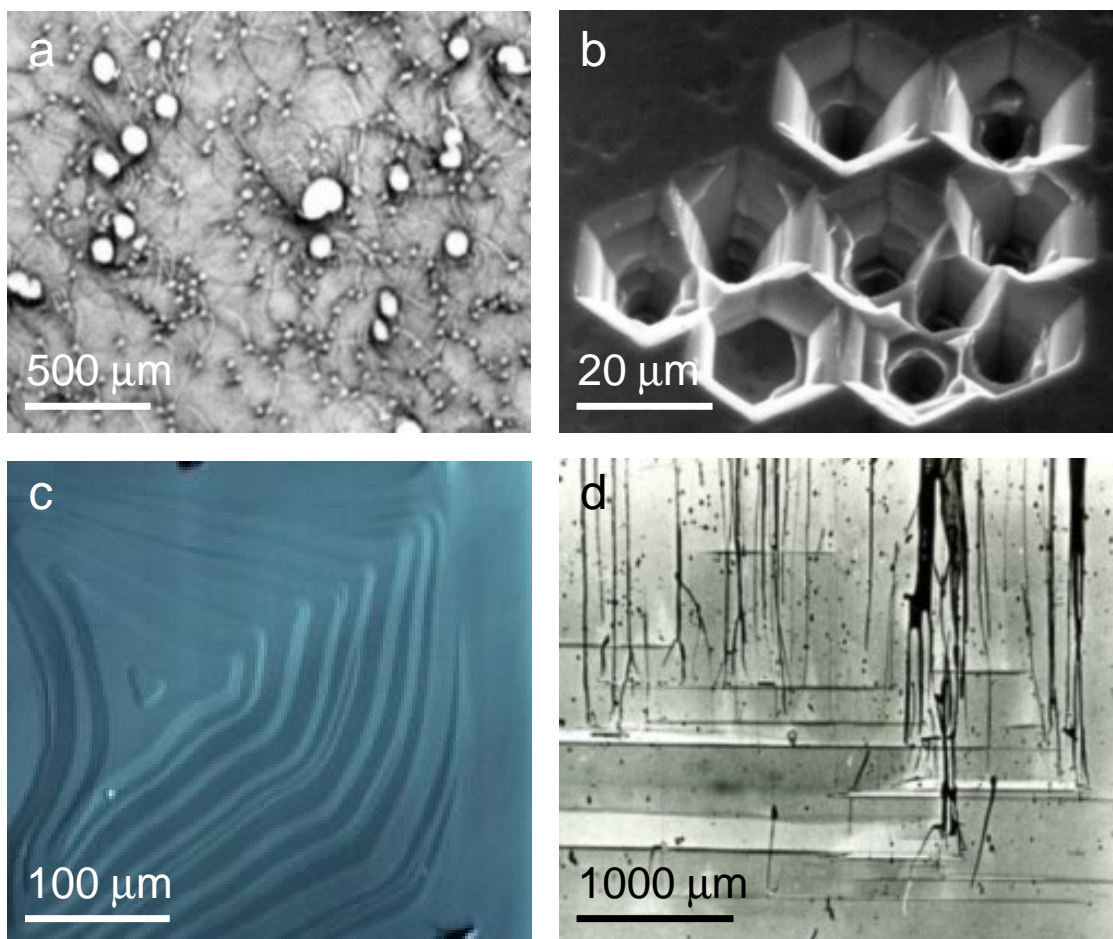


Рис. 1. Микротрубки в монокристаллах SiC. (a) Рентгеновская топограмма кристалла SiC (0001). Округлые изображения соответствуют винтовым супердислокациям. Условия эксперимента: полихроматическое СИ; основной вектор дифракции $g = 00024$ для основной длины волны $\lambda = 1.25 \text{ \AA}$ [38]. (b) СЭМ-изображение поверхности образца 6H-SiC (0001). Ямки травления соответствуют микротрубкам. (c) Спиральный рельеф на грани базиса. Метод СЭМ. (d) Оптическая микрофотография пластины 4H-SiC ($1\bar{1}00$).

Однако сравнительно низкое разрешение метода оптической микроскопии не позволяет различить детали их морфологии.

Горизонтальные границы на рис. 1, *d* разделяют слоистые включения инородных политипов (здесь 6H и 15R) в объеме основного политипа 4H-SiC. Все политипы SiC имеют гексагональные элементарные ячейки с одинаковыми параметрами a и b ; однако высота ячейки c для разных политипов имеет разную величину. Для 6H, 15R и 4H величина c соответственно равна $c = 15.11 \text{ \AA}$, 37.70 \AA и 10.05 \AA . Зарождение включений паразитных политипов является важным фактором, влияющим на эволюцию дефектов в процессе роста кристалла. В частности, такие включения останавливают распространение винтовых дислокаций [39]. Для

объяснения этого наблюдения в работе [40] была предложена модель превращения винтовых дислокаций со сплошным ядром в дислокации базисной плоскости и затем — в дислокации с полым ядром. В то же время, по мнению некоторых других авторов, формирование МТ на границах включений политипов происходит под действием полей напряжений, вызванных несоответствием параметров решеток включения и матрицы [41]. Было обнаружено группирование МТ на границах включений [42], которое приводило к зарождению пор и даже к образованию макротрещин [43]. Экспериментальные результаты указывали на то, что МТ взаимодействуют с включениями политипов. Однако конкретный механизм, который объяснял бы явление взаимодействия, не предлагался. Этой проблеме уделено особое внимание в данной работе.

В отличие от просто пор, дислокационные МТ распространяются из подложки в осажденные слои и претерпевают превращения с образованием полных решеточных дислокаций. Последнее обусловлено тем, что вновь образованные МТ квазистабильны. Наличие флуктуаций может вызвать коалесценцию или диссоциацию МТ.

На рис. 2, *a* показана оптическая микрофотография ростовой поверхности эпитаксиального слоя 4H-SiC, осажденного на подложку того же политипа методом газофазной эпитаксии [44]. Перед наблюдением образцы были протравлены расплавом КОН. Заметим, что темные ямки гексагональной формы представляют собой дислокационные МТ. С другой стороны, круглые ямки представляют собой элементарные винтовые дислокации. После осаждения слоя два вида ямок травления (рис. 2, *a*) появились

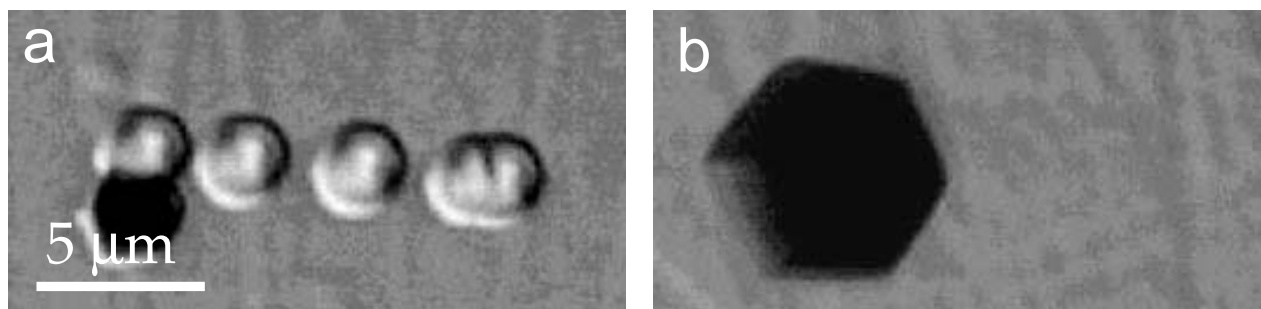


Рис. 2. Реакция расщепления дислокационной микротрубки на элементарные винтовые дислокации. (а) Оптическая микрофотография ростовой поверхности эпитаксиального слоя 4H-SiC и (b) подложки того же политипа [44].

в том же месте, где в подложке была одна большая ямка (рис. 2, *b*). Это указывает на то, что МТ проросла в слой, и винтовые дислокации образовались в процессе эпитаксии. На ранних стадиях эпитаксиального роста супердислокация с вектором Бюргерса $b = nc$ превратилась в n элементарных дислокаций с вектором Бюргерса c . В результате трансформации трубка заросла. Аналогичные процессы, оказывающие заметное влияние на структурное совершенство слоев SiC, могут происходить при их выращивании жидкофазной эпитаксией [45] или методом сублимации [46, 47].

Долгое время оставалось не ясным, как МТ взаимодействуют между собой. Для того, чтобы установить факт взаимодействия, необходимо либо измерить величину вектора Бюргерса супердислокаций до и после реакции, либо проследить за изменением сечений трубок. Применение первого способа ограничено плотностью дефектов в образце, что наглядно демонстрирует метод рентгеновской топографии.

На рис. 3 показаны топограммы образцов 6H-SiC ($11\bar{2}0$) с разной плотностью дефектов структуры [48, 49]. В образце с низкой плотностью дефектов изображения супердислокаций с полыми ядрами имеют ровные края (рис. 3, *a*). При этом структура самих изображений является весьма сложной. Она определяется контрастом трех типов [50]: светлая середина и темные края формируются за счет ориентационного контраста; распределение интенсивности снаружи темных краев обусловлено экстинкционным контрастом; и динамический контраст сливается с фоном изображения. Путем моделирования ориентационного контраста были определены векторы Бюргерса супердислокаций винтового типа в этих образцах [48].

Однако при увеличении плотности дефектов края изображений МТ сильно искажаются (рис. 3, *b*). Этому виной являются дислокации базисной плоскости, которые объединяются в популяции вокруг полых ядер супердислокаций [49]. Первые не разрешаются в виде отдельных линий на топограммах, но вызывают изменение контраста. Моделирование рентгенотопографических изображений супердислокаций [48] становится невозможным. Поведение контраста наглядно демонстрирует его зависимость от микродисторсии кристаллической решетки, а не от морфологии трубки.

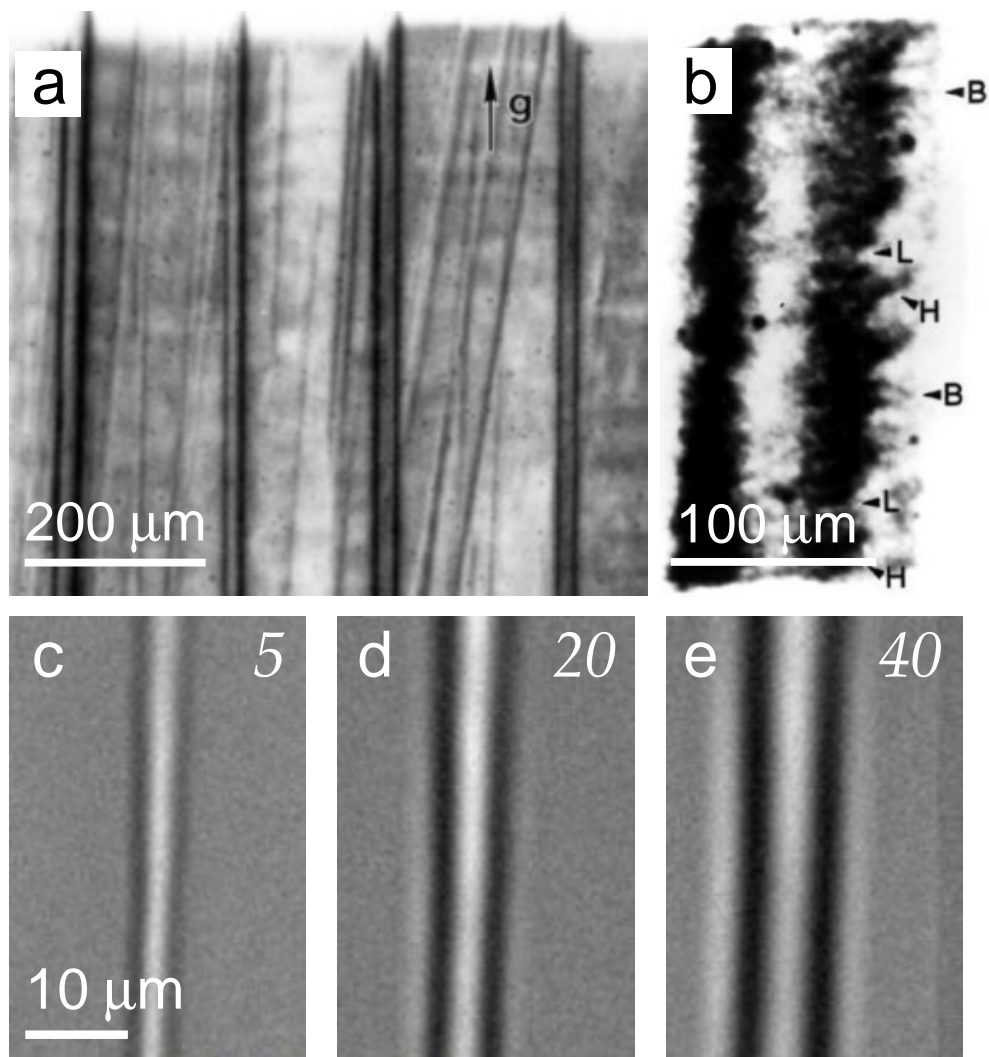


Рис. 3. (a) Винтовые супердислокации в пластине 6H-SiC ($11\bar{2}0$). Рентгеновская топограмма на просвет. Вектор дифракции $g = 0006$ [48]. (b) Супердислокация, окруженная скоплениями дислокаций базисной плоскости. Маркеры В, Н и L указывают на области с разной величиной контраста. Вектор дифракции $g = \bar{1}2\bar{1}0$ обращен влево; $\lambda = 0.64 \text{ \AA}$ [49]. (c, d, e) Фазово-контрастные изображения микротрубки в образце 4H-SiC ($\bar{1}100$), измеренные на разных расстояниях от образца. Расстояния в сантиметрах указаны цифрами на фрагментах.

Для проведения анализа дислокаций необходимо, чтобы их изображения не перекрывались. В кристаллах SiC с низкой плотностью винтовых дислокаций со сплошным ядром ($\sim 500 \text{ см}^{-2}$) векторы Бюргерса были определены методом секционной топографии в полихроматическом СИ [51]. Кристаллическое совершенство образцов обеспечил метод повторяемого процесса роста на поверхностях затравочного кристалла с ориентацией ($11\bar{2}0$) или ($\bar{1}\bar{1}00$) [52]. Здесь уместно отметить интересный эффект коррелированного изменения векторов Бюргерса дислокаций, разделенных расстояниями больше 200 микрометров, который указывает на то, что винтовые дислокации со

сплошным ядром могут взаимодействовать на расстоянии. В дальнейшем будет показано, что бесконтактные реакции между супердислокациями с полым ядром также могут иметь место (см. главу 3).

Рассмотрим теперь особенности контраста микротрубки на ее фазово-контрастных изображениях. На рис. 3, *c–e* показаны изображения участка одной и той же МТ, записанные на детектор на разных расстояниях от образца. Цифры на изображениях указывают расстояние в сантиметрах. На малом расстоянии $r_d \leq 5$ см трубка имеет вид светлой полосы относительно слабого контраста (рис. 3, *c*). При увеличении расстояния структура изображения изменяется: ширина светлой полосы увеличивается, появляются черные полосы по ее краям (рис. 3, *d–e*). Заметим, что на изображении, полученном на расстоянии 5 см, поперечный размер трубки монотонно уменьшается в направлении сверху вниз. Рассчитав изменение сечения МТ методом моделирования ее изображений, можно оценить изменение вектора Бюргерса, поскольку радиус трубки пропорционален квадрату вектора Бюргерса содержащейся в ней дислокации [15].

Как было показано выше, МТ обладают способностью прорасти вдоль направления роста с ориентацией [0001]. При выращивании карбида кремния методом сублимации совершенство кристалла в основном определяется степенью совершенства кристалла-затравки. Однако в принципе возможно создать условия, при которых растущий слиток будет свободно распространяться за пределы контура затравки. Это должно приводить к уменьшению средней плотности МТ.

Для реализации этой идеи были разработаны методы выращивания кристалла SiC в условиях осевого (вертикального) и латерального (бокового) градиентов температуры. Модифицированный процесс, описанный в работе [53], позволил получить кристаллы политипов 4Н и 6Н, площадь которых была несколько больше по сравнению с затравкой, а плотность дислокаций и МТ была ниже, чем в коммерческих подложках. Другие исследователи [54] выполнили численное моделирование процесса латерального роста и, оптимизировав конструкцию своего графитового тигля, получили слитки диаметром до 45 мм. Весьма успешным оказался метод „свободного распространения“, описанный в работе [55]. Метод обеспечивает свободное распространение кристалла в на-

правлениях, перпендикулярных оси роста $[0001]$, до тех пор, пока края слитка не приблизятся к стенкам танталового тигля. Важным условием получения качественных кристаллов является отсутствие контакта со стенками в течение всего процесса роста. Таким путем были выращены слитки политипов 4H и 6H-SiC, весьма интересной особенностью которых был габитус секториально построенного гексагонального кристалла.

Прямое наблюдение дефектов структуры методом рентгеновской топографии, описанное авторами работы [53], показало, что распространение кристалла за пределы контура затравки не приводило к увеличению плотности винтовых дислокаций и МТ вдоль направления $[0001]$; однако в таких кристаллах формировались дефекты упаковки, распределенные вдоль направлений $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ [56]. Путем изучения слитков гексагонального габитуса, полученных методом свободного распространения [55], было установлено существенно неоднородное распределение плотности прорастающих дислокаций и МТ. По данным оптической микроскопии плотность ямок травления была максимальной в центральной части слитка, расположенной над затравкой; и она уменьшалась по направлению к периферии. Выяснение механизмов структурных превращений в кристаллах гексагонального габитуса [55] выполнено в настоящей работе (см. главу 4).

Заключая описание микропор в монокристаллах SiC, отметим, что в данном параграфе приведены лишь некоторые данные о свойствах дислокационных микротрубок с целью не только изложить уже известные сведения, но и показать неполноту знаний, полученных при изучении этих свойств методами, которые обычно применялись ранее. Значительные успехи были достигнуты с помощью рентгеновской топографии и методов исследования микроскопического строения поверхности образцов. Метод топографии оказался особенно полезен для экспериментального подтверждения дуалистической природы МТ, которую отражает формула Франка [15]. Кроме дислокационного заряда, МТ имеет свободную поверхность. Однако в течение долгого времени наблюдать микроскопические изменения формы поверхности МТ, происходящие в объеме кристалла, было вряд ли возможно по причинам низкого разрешения или разрушающего воздействия измерений. Данные таких наблюдений, как будет показано ниже, содержат ценную информацию о свойствах МТ.

1.2 Метод фазово-контрастного изображения на просвет в СИ

1.2.1 Принципы метода

Метод фазово-контрастного изображения прозрачных объектов на просвет в рентгеновском излучении практически полностью соответствует идее голографии, предложенной Габором еще в 1948 году [57]. Идею метода проще всего объяснить на примере изображения бор-вольфрамового волокна, состоящего из вольфрамовой проволоки диаметром 15 мкм, на которую нанесен аморфный бор. Полный диаметр волокна равен 100 мкм. Схема и результаты эксперимента показаны на рис. 4. В реальной схеме есть еще монохроматор, на рисунке не показанный. Монохроматор выделяет узкий пик при заданной частоте из широкого спектра СИ, но никак не влияет на ход лучей.

Источник СИ имеет конечный размер S в направлении оси x , перпендикулярной оптической оси z . На большом расстоянии r_s (30–100 м) от источника находится объект (бор-вольфрамовое волокно), очень слабо поглощающий рентгеновское излучение. Далее, на конечном расстоянии r_d

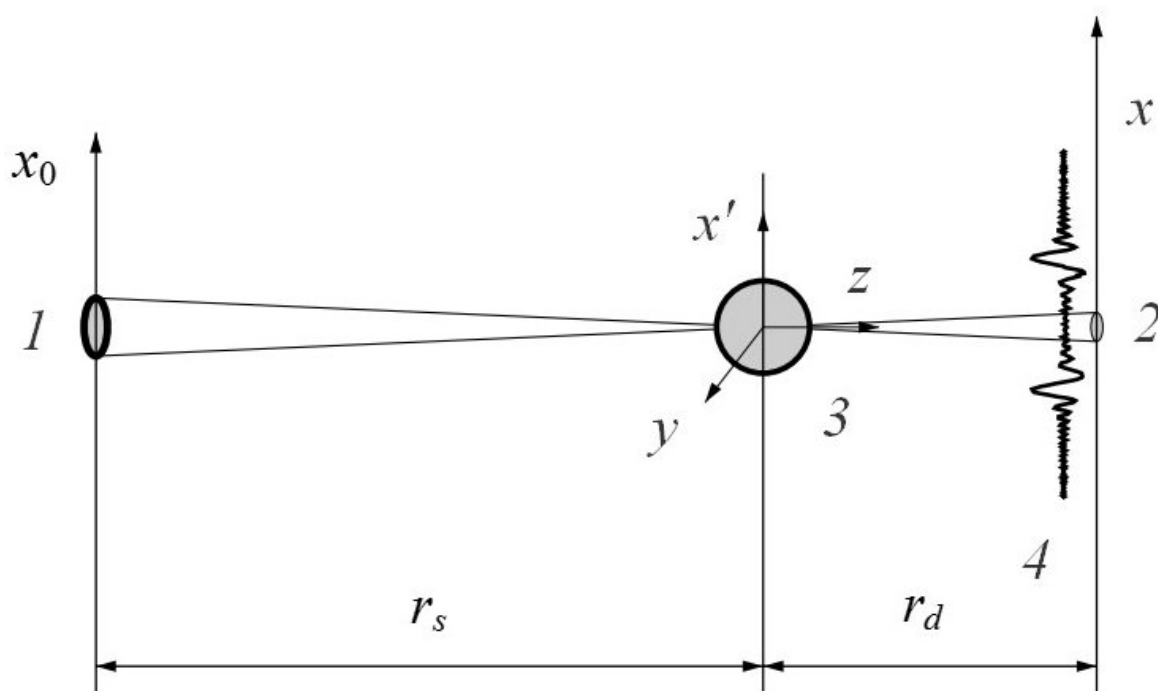


Рис. 4. Упрощенная экспериментальная схема метода фазово-контрастного изображения прозрачных объектов на просвет в СИ [58]. 1 – источник СИ, показан его поперечный размер. 2 – поперечный размер проекции источника на детекторе. 3 – образец (бор-вольфрамовое волокно). 4 – распределение интенсивности на детекторе.

(0.1–5 м) от объекта расположен позиционно-чувствительный детектор с матрицей приборов с зарядовой связью (ПЗС), измеряющий интенсивность излучения.

В зависимости от расстояния между образцом и детектором (r_d) выделяют три области. В ближнем поле радиус первой зоны Френеля r_1 меньше размера объекта D в поперечном сечении, перпендикулярном к оси пучка СИ: $r_1 < D$. Условия дальнего поля выполняются для больших расстояний r_d , когда $r_1 \gg D$. Наконец, в области дифракции Френеля, или в среднем поле, $r_1 \approx D$. Здесь $r_1 = (\lambda r_d)^{1/2}$, где λ – длина волны монохроматического излучения.

В ближнем поле процесс формирования интерференционной картины можно качественно объяснить следующим образом. В результате преломления лучей на границах волокна они отклоняются за пределы области тени, так как коэффициент преломления $n = 1 - \delta$ меньше единицы. В эту область также попадают лучи, проходящие мимо объекта. Оба типа лучей оказываются в детекторе в одном и том же месте и интерферируют. Разность фаз между ними изменяется при изменении координаты x на детекторе из-за разной длины прохождения в воздухе. В результате на кривой изменения интенсивности возникают максимумы, когда разность фаз равна четному числу π , и минимумы, когда она равна нечетному числу π .

Осцилляции интенсивности имеют простую форму, но с переменными амплитудой и периодом, причем как амплитуда, так и период медленно уменьшаются при увеличении расстояния от края тени. Однако реальная картина в существенной степени будет зависеть от размера источника. Аппроксимацией реального источника СИ является модель, в которой каждая точка поперечного размера источника излучает независимо, и интенсивность излучения изменяется по гауссовому закону, что позволяет говорить о полуширине источника в поперечном направлении. Каждая точка на источнике будет приводить к одинаковой интерференционной картине, смещенной в поперечном направлении. Такой результат можно получить, если поворачивать оптическую ось на некоторый угол. Соответственно реальная картина формируется в результате свертки картины интерференции для точечного источника с кривой проекции интенсивности источника на детекторе. Это также гауссова функция, но с полушириной $s = Sr_d/r_s$, где

S – поперечный размер источника. При относительно небольшом размере S пропадают лишь далекие осцилляции с малым периодом. Однако с ростом размера источника могут исчезнуть все осцилляции и изображение волокна пропадет, если не учитывать очень слабое изменение интенсивности из-за поглощения.

Отметим, что интерференционный характер изображения увеличивает интенсивность в максимуме в 4 раза на ближних к краю тени максимумах. Важно также и то, что боковые сильные осцилляции создают практически все объекты конечных размеров. И эти осцилляции не пропадают даже при довольно большом размере источника [59]. Вместе с тем ясно, что важен не столько сам размер источника, сколько его угловой размер, видимый из точки на объекте: $\alpha = S/r_s$. С ним связан другой параметр, который называется длиной поперечной когерентности $L_{tc} = \lambda/2\alpha$, где λ – длина волны. Он равен максимальному расстоянию между точками в поперечном сечении объекта, которые еще могут интерферировать.

Таким образом в ближнем поле изменения фазы поперек пучка когерентного рентгеновского излучения, выходящего из образца, приводят к изменениям интенсивности, которые регистрирует детектор, то есть к контрасту изображения. На очень малом расстоянии r_d положение границ объекта на изображении практически точно указывает на размер объекта. Однако с расстоянием картина усложняется: появляются дополнительные осцилляции интенсивности. Для количественного определения параметров, например, размеров и формы поперечного сечения объекта, требуется решение обратной задачи. Решение можно получить прямыми методами вычисления профиля фазы из регистрируемого детектором профиля интенсивности или с помощью компьютерного моделирования изображений.

Среди большого числа работ первого типа отметим следующие [60–95]. Работы по компьютерному моделированию изображений (см., например, [96–106]) стали появляться одновременно с первыми экспериментальными исследованиями. Однако довольно долгое время фазово-контрастные изображения использовались лишь для наблюдения за внутренней структурой материалов (см., например, [107–119]). Такие исследования до сих пор преобладают в общем объеме публикаций.

В качестве примера качественного подхода приведем исследование микропор в квазикристаллах Al–Pd–Mn, которое проводилось в Европейском научном центре по использованию СИ в Гренобле, Франция, группой Барушеля [120–122]. Для выяснения природы микропор с размерами порядка 2–30 мкм был реализован комплексный подход с использованием разных методов получения изображений: топографии, радиографии и фазово-контрастного изображения на просвет. По мере накопления информации экспериментальное исследование переросло в количественный анализ контраста изображений в ближнем поле при поддержке численного моделирования [99].

Другими примерами количественного подхода являются исследования по определению и оптимизации экспериментальных параметров [58, 100, 101], изучению биологических тканей [109, 117, 123] и т. д. Однако, несмотря на то, что метод на просвет широко использовался в самых разных областях знания, по его использованию для количественного анализа микропор в монокристаллах сделано сравнительно мало работ. Его применение для микропор с размерами от долей микрометра до нескольких микрометров ни разу не было предметом детального изучения. Данная работа восполняет этот пробел.

1.2.2 Распространение и адаптация метода

Метод фазово-контрастного изображения на просвет в СИ был впервые предложен и экспериментально продемонстрирован в работах [96, 124]. Обе работы были выполнены на источнике СИ третьего поколения с энергией электронов 6 ГэВ, расположенном в Гренобле, Франция (European Synchrotron Radiation Facility, ESRF), вскоре после того, как он начал функционировать в первой половине 90-х годов прошлого столетия. В то время это был единственный такой источник в мире. Количество статей, которые ссылаются на пионерские работы [96, 124], постоянно растет. Увеличение цитируемости было особенно заметно во втором десятилетии после их публикации, что можно объяснить увеличением числа источников СИ третьего поколения в мире. Однако эксплуатация метода на источниках СИ умеренной яркости потребовала адаптации.

В Юго-Восточной Азии метод изображения на просвет в СИ положил



Рис. 5. Источники СИ третьего поколения в Юго-Восточной Азии (слева направо): BSRF, г. Пекин, Китай; PLS, г. Поханг, Южная Корея; TPS, г. Тайпей, Тайвань.

начало использованию рентгеновского фазового контраста на национальных комплексах в Китае (Beijing Synchrotron Radiation Facility, BSRF), в Южной Корее (Pohang Light Source, PLS) и на Тайване (Taiwan Photon Source, TPS) (рис. 5). После сдачи в эксплуатацию в конце 1990-х гг. эти комплексы работали при энергии электронов не выше 2–2.5 ГэВ. Общая проблема, характерная для источников СИ умеренной яркости, состоит в том, что излучение из поворотного магнита имеет достаточно высокую интенсивность только в схеме без монохроматора. Даже рентгеновское зеркало так сильно уменьшает поток фотонов, что экспозиция может увеличиться в 20 раз. Это существенно удлиняет время экспериментов, особенно в методе томографии.

В конце 1990-х гг. появились опасения, что метод, требующий высокой когерентности рентгеновского излучения (обеспечиваемой только очень сложными и дорогими источниками), будет иметь ограниченное применение. Появились исследования, авторы которых акцентировали внимание на формировании фазово-контрастных изображений в условиях низкой временной когерентности СИ [125–127]. Эти исследования подтвердили и дополнили результаты, полученные при использовании пучка из микрофокусной рентгеновской трубки [128, 129]. Основной акцент был сделан на расширении границ при-

Таблица 1. Некоторые характеристики источников СИ в Юго-Восточной Азии и станций, предназначенных для получения фазово-контрастных изображений

Комплекс	Параметры комплекса			Станция		
	Периметр	Энергия	Ток электронов	Источник	Энергия фотонов	Поток
BSRF	432 м	2.5 ГэВ	250 мА	Вигглер	6–22 кэВ	10^{10}
PLS	280 м	3.0 ГэВ	400 мА	Вигглер	16–50 кэВ	10^9
TPS	518 м	3.0 ГэВ	500 мА	SWLS	6–14 кэВ	10^{11}

менения метода путем ослабления требований к параметрам источника СИ. В качестве аргумента использовался известный факт, что снижение временной когерентности не препятствует визуализации границ объектов в ближнем поле. Поэтому для регистрации фазово-контрастных изображений достаточно иметь излучение с низкой временной когерентностью от источника СИ с небольшим (но и не очень малым) поперечным размером порядка 100–200 мкм, то есть с таким, какой имеют источники СИ второго поколения [125].

В начале 2000-х гг. появились станции у поворотных магнитов, установленных на орбитах накопителей для генерации СИ умеренной яркости, назначением которых было использование метода фазового контраста в самых разных областях, от материаловедения до изучения культурного наследия и биомедицинских приложений. С типичным сценарием адаптации метода можно ознакомиться на примере проекта, который был реализован на источнике СИ третьего поколения Pohang Light Source в г. Поханге, Южная Корея. Проект завершился открытием станции „Рентгеновская микроскопия“ в 2003 г. В то время энергия электронов в накопительном кольце южнокорейского источника СИ не превышала 2.5 ГэВ. Заметим, что через шесть лет источник был основательно модернизирован.

Станция „Рентгеновская микроскопия“ отличалась некоторыми „важными и нетрадиционными особенностями“ [130]. Эти особенности были заложены в проект на основании результатов ранее выполненных исследований [63, 126–129]. В частности, ключевой особенностью станции было использование немонохроматизированного СИ, а „главным стратегическим решением“ — устранение монохроматора [130]. Полученное при этом преимущество заключалось в очень большом увеличении потока, в результате чего были решены две задачи проекта: достижение высокого пространственного разрешения и обеспечение высокого временного разрешения на уровне единиц миллисекунд. Первое достижение привело к тому, что пучок СИ имел достаточно высокую пространственную когерентность, поскольку поворотный магнит обеспечивал малый поперечный размер источника, а расстояние от источника до места проведения экспериментов было довольно большим. Второе достижение обеспечило регистрацию фазово-контрастных изображений в режиме видеосъемки, что открыло возможности для проведения экспериментов в режиме реального

времени. Была налажена технология быстрой томографии. Сочетание разных типов взаимодействия СИ с веществом обеспечило комплексный подход к изучению микроструктуры. Весьма заметные успехи были связаны с исследованием био-медицинских объектов, а также с *in-situ* экспериментами в условиях ближнего поля (см., например, [131–143]).

В настоящее время повсеместно происходит переход к экспериментам в монохроматическом СИ. Этому способствуют такие проекты, как модернизация источника PLS без его остановки, реализованная в 2009–2011 гг. и завершившаяся увеличением энергии электронов от 2.5 до 3.0 ГэВ; строительство новых станций на источниках TPS и PLS; а также переход на источники четвертого поколения в г. Поханге — PAL-XFEL — и в г. Шангхае. Параметры некоторых станций по использованию метода фазово-контрастного изображения на просвет в СИ перечислены в таблице 1. Не только в Азии, но и в мире в целом рентгеновский фазовый контраст стал одним из ключевых пунктов программ развития всех крупных источников СИ.

1.2.3 Регистрация фазово-контрастных изображений

Метод фазово-контрастного изображения на просвет отличается простотой схемы эксперимента. Кроме источника, образца и детектора больше ничего не требуется. Однако на самом деле технические средства, обеспечивающие его работу, устроены весьма сложно и снабжены автоматической системой управления. Типичная схема размещения экспериментального оборудования показана на рис. 6. Образец (кристаллическая пластина P) расположен на расстоянии r_s от источника СИ (на рисунке не показанного). При отсутствии оптических элементов, обеспечивающих временную когерентность пучка, последний проходит сквозь систему щелей, схематически изображенной одной щелью K , просвечивает образец и возбуждает свечение в диапазоне видимого света от кристаллического сцинтиллятора S_c . Последний является частью системы регистрации, состоящей также из зеркала M , оптического объектива L и ПЗС-детектора D .

Качество изображения зависит от нескольких факторов: материала и толщины сцинтиллятора, фокусного расстояния объектива, динамического диапазона детектора и размера пиксела ПЗС-матрицы. Распространенным

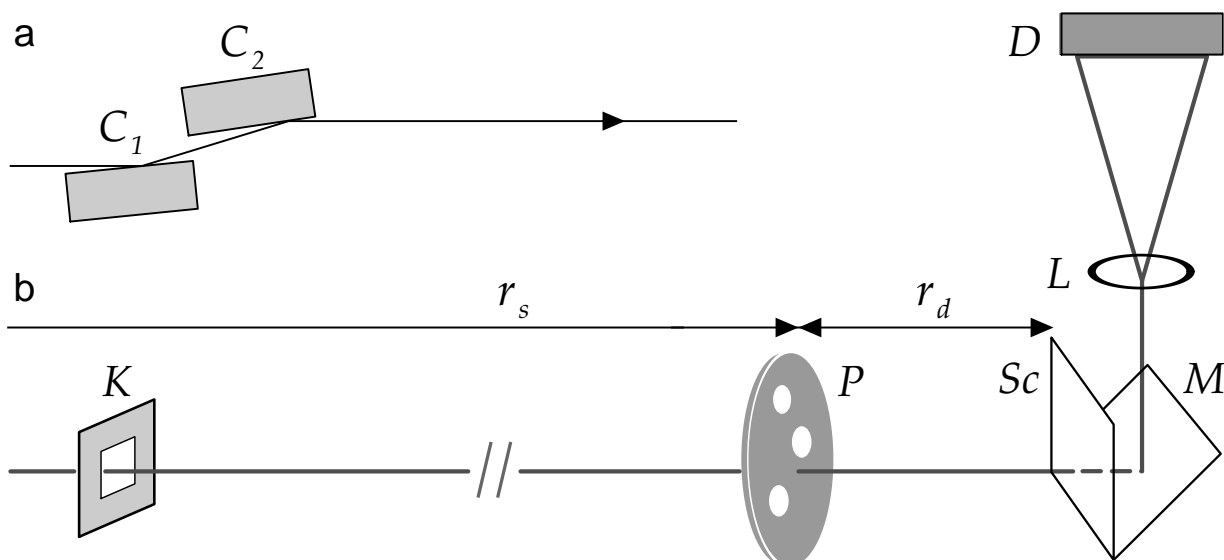


Рис. 6. Диаграмма размещения экспериментального оборудования для получения фазово-контрастных изображений методом на просвет в СИ. (а) Монохроматор настроен на отражение 111 от двух кристаллов кремния C_1 и C_2 . (б) При отсутствии монохроматора пучок СИ формируется щелью K и, пройдя сквозь образец P , достигает системы регистрации, состоящей из сцинтиллятора Sc , зеркала M , объектива L и ПЗС-детектора D . Источник СИ и детектор находятся на расстояниях соответственно r_s и r_d от образца.

недостатком кристаллических сцинтилляторов из соединений, например, CsI, $CdWO_4$, $Y_3Al_5O_{12}(Ce)$ является нелинейность отклика при определенной энергии [144]. Большая толщина кристалла-сцинтиллятора вдоль пучка снижает разрешение, а при малой толщине срок службы сцинтиллятора сокращается. Для системы сцинтиллятор–ССД принято приводить оптимизированную величину разрешения, которую получают делением среднего размера эффективных пикселей ПЗС-матрицы на увеличение объектива. Оптимизированное разрешение, как правило, составляет величину меньше микрона. Однако следует отметить, что с ростом увеличения объектива четкость изображения ухудшается.

Сравним возможности двух детекторов M_1 и M_2 с размером пиксела соответственно $5.5 \times 5.5 \text{ мкм}^2$ и $9 \times 9 \text{ мкм}^2$. Пусть измеряется изображение микротрубки диаметром несколько микрон. Качество изображения зависит от отношения размера пиксела к размеру объекта. Установка оптического объектива $20\times$ уменьшает это отношение так, что при пересчете на изображение размер пиксела становится 0.27 и 0.45 мкм соответственно для M_1 и M_2 . В ближнем поле, где размер изображения почти равен размеру

объекта, детектор M_1 предпочтительнее, чем M_2 . Для измерений в дальнем поле, где размер изображения увеличивается, оба детектора вполне подходят. На самом деле реальный размер пикселя больше, чем эффективный, и разрешение детектора хуже ожидаемого.

Еще один важный фактор, влияющий на качество изображения, — это паразитный шум, который регистрирует детектор. Этот шум получается наиболее сильным в схеме без монохроматора (рис. 6, *b*). Для детекторов, измеряющих изображения в пучке СИ с широким частотным спектром, полезные сигналы должны быть существенно выше фона, желательно в десятки раз. Поэтому время экспозиции нужно выбирать таким образом, чтобы получать максимально возможную интенсивность. Показателем для предпочтительного выбора детектора становится диапазон, поэтому 16-битный детектор лучше, чем детектор с диапазоном 12 бит. Последний лучше подходит для регистрации монохроматического излучения, большим достоинством которого является весьма низкое паразитное рассеяние.

Уменьшение ширины спектрального максимума положительно влияет на качество изображения. Выделение спектрального пика при заданной частоте осуществляют кристаллические монохроматоры, изготовленные из высокосовершенного кремния (рис. 6, *a*), или рентгеновские зеркала из синтетических материалов [145, 146].

1.3 Рентгеновская топография в синхротронном излучении

С появлением методов регистрации фазово-контрастных изображений, рентгенотопографические изображения стали все чаще называть брэгг-дифракционными. Принцип формирования брэгг-дифракционного изображения схематически показан на рис. 7. В кристалле 1 есть область искажения кристаллической решетки 2. Дифрагированное излучение регистрирует двухкоординатный детектор 3 или пленка, расположенные за образцом. В области 4 контраст наблюдается в том случае, если дифракция в области искажения 2 ведет себя не так, как в остальной части кристалла. Это выражается в изменении интенсивности излучения, направления его распространения и других эффектах [50, 147, 148].

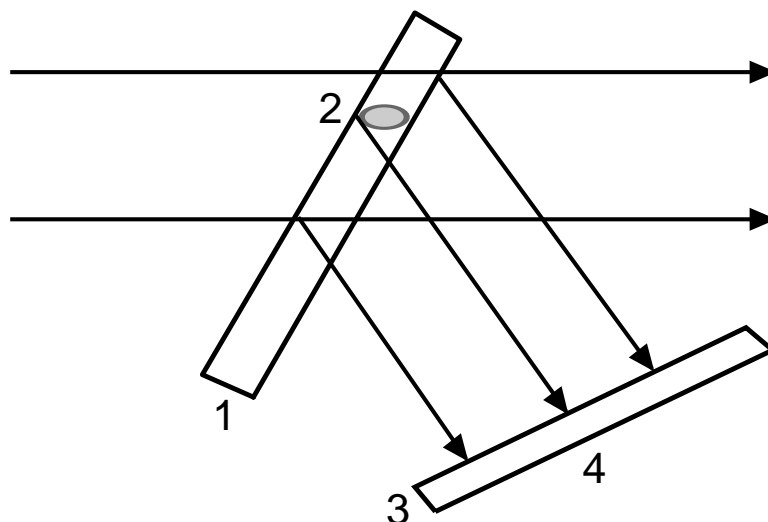


Рис. 7. Принцип визуализации дефектов в кристалле методом рентгеновской топографии. 1 – кристалл; 2 – область искажения кристаллической решетки; 3 – детектор (или пленка); 4 – изображение области искажения на детекторе (подробности в тексте).

Для получения проекционных топограмм в излучении рентгеновской трубки кристалл и пленка совершают одновременное перемещение поперек пучка [50]. В пучке СИ перемещают только образец, регистрируя топограммы одну за другой через короткий промежуток времени. При этом фактором, играющем существенную роль для сокращения продолжительности эксперимента, является размер изображения, определяемый, в свою очередь, размером пучка на образце. Последний можно оценить, исходя из того, что угловая расходимость определяется только расходимостью пучка СИ.

Из-за релятивистских эффектов „полная“ угловая расходимость классического точечного источника, излучающего во все стороны, трансформируется в узкий пучок. Когда электроны в накопительном кольце движутся по орбите с околосветовой скоростью, эмиссия направлена по касательной к орбите. За счет естественной коллимации пучок имеет вид конуса, угловая расходимость которого в перпендикулярном к плоскости орбиты направлении приблизительно равна $\Omega = m_0 c^2 / E$, где m_0 – масса покоя электрона; c – скорость света; E – энергия электрона [149]. Собственная расходимость Ω формирует высоту пучка на заданном расстоянии от точки излучения до места проведения эксперимента. Когда энергия релятивистских электронов $E = 6$ ГэВ, собственная расходимость $\Omega = 8e^{-5}$ или $\Omega = 16.5$ угл. сек. Кривая проекции интенсивности источника на детекторе, аппроксимируемая функцией Гаусса, имеет полуши-

рину 0.5 мм на расстоянии 100 м. При этом пучок еще достаточно широк, чтобы сформировать изображение площадью $10 \times 10 \text{ мм}^2$. И антибрэгговское разрешение на топограмме не хуже, чем 0.5 мкм, когда расстояние от образца до пленки составляет 10 см. С уменьшением энергии E расходимость Ω увеличивается. При этом антибрэгговское разрешение остается высоким благодаря тому, что современные магнитные системы вывода пучка обеспечивают малый размер источника в направлении, нормальном к плоскости рассеяния. В пятой главе настоящей работы изложены результаты краткого сравнения параметров источников СИ для рентгеновской топографии.

Данное исследование базировалось в основном на использовании метода топографии в белом СИ [150, 151]. Когда спектр падающего излучения непрерывный, изображения однородно изогнутых или деформированных областей в объеме образца, субзерен, двойников, включений политипов и других дефектов можно получить за одну экспозицию. Это свойство метода является преимуществом по сравнению с лабораторными условиями. В излучении рентгеновской трубки максимально допустимый диапазон разориентаций отражающих плоскостей определяется сверткой угловой ширины характеристической линии спектра с расходимостью излучения. Типичная ширина линий составляет порядка 10^{-3} \AA , что эквивалентно угловой расходимости ~ 100 угл. сек. При этом, как правило, расходимость в брэгговской плоскости должна быть ≤ 20 угл. сек. Поэтому разориентации, превышающие несколько угловых секунд, приводят к тому, что только часть кристалла удовлетворяет условию Брэгга в данный момент времени. Другими словами, на топограммах формируются контуры брэгговского отражения, охватывающие те части образца, которые находятся в отражающем положении. На изображениях появляются области нулевого контраста. Похожие проблемы могут иметь место при использовании топографии в монохроматическом СИ. Примеры, наглядно показывающие эти проблемы, будут приведены ниже при описании экспериментов с нарушенными кристаллами.

Другим важным преимуществом излучения с непрерывным спектром является тот факт, что множество дифрагированных пучков можно зарегистрировать одновременно. Это обеспечивает получение достаточного количества данных для анализа микродеформации, вызванной дислокациями, границами

двойников или политипов и т. д. Благодаря малому угловому размеру источников СИ каждое лауэ-пятно является топограммой высокого разрешения. При этом расстояние между образцом и детектором может быть на 1–2 порядка больше, чем расстояние от образца до пленки, допустимое в лабораторных условиях. В пространстве между образцом и детектором можно размещать громоздкое оборудование. Для размеров самого образца принципиальных ограничений нет. В работе [152] описано рентгено топографическое исследование реальной структуры монокристалла природного кварца весом 65 кг без его разрушения (рис. 8).

В полихроматическом СИ схему метода в геометрии на просвет (рис. 8, *a*) можно сочетать с геометрией обратного отражения (на рисунке не показанной). Эффективность использования схем обоих типов в процессе одного эксперимента продемонстрирована, например, в работе [153], посвященной изучению субзерен в мульткристаллическом кремнии.

Для регистрации лауэтопограмм служат цифровые двухкоординатные детекторы в виде плоских панелей. Чем больше площадь панели, тем более подробную дифракционную картину можно получить и по ней восстановить ориентацию кристалла относительно направления пучка СИ. В настоящее время достигнуты большие успехи в увеличении площади плоскопанельных детекторов. Однако эти достижения не сопровождаются

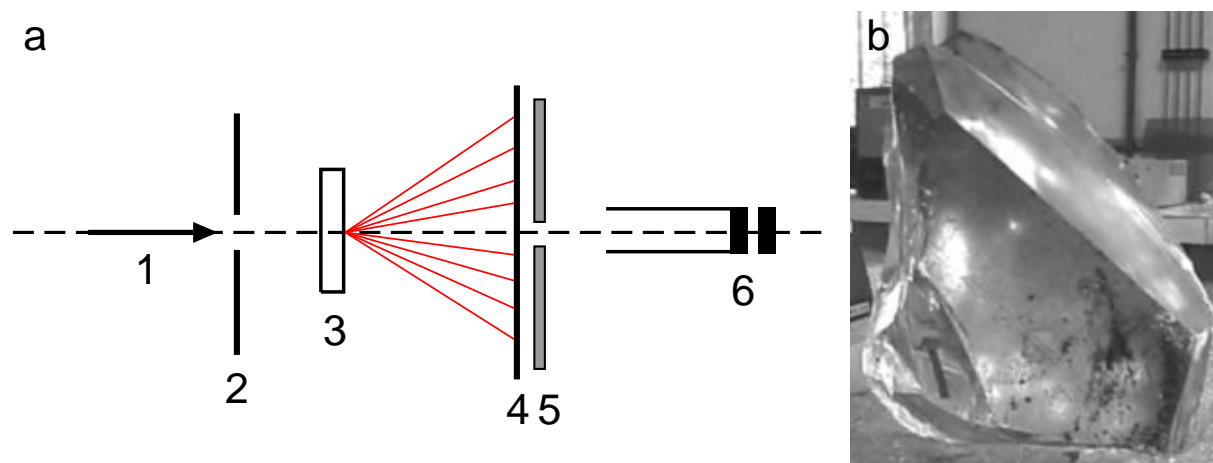


Рис. 8. (*a*) Принципиальная схема рентгено топографического эксперимента в полихроматическом СИ. 1 – направление пучка СИ; 2 – щель; 3 – образец; 4 – флуоресцентный экран; 5 – фотопленка; 6 – заглушка. Дифрагированное излучение показано красными линиями. (*b*) Кристалл природного кварца весом 65 кг. В течение эксперимента осуществлялось вертикальное сканирование образца и пленки [152].

столь же успешным улучшением разрешения. Поэтому использование панелей эффективно в основном при настройке образца. Приведем для примера два типа панельных детекторов прямого преобразования: Naomi ($35 \times 43 \text{ см}^2$) и Vieworks ($47 \times 59 \text{ см}^2$) [154, 155]. Они имеют размер пикселя ПЗС-чипа соответственно 30 и 140 микрон. Это очевидно ниже того уровня, который может обеспечить рентгеновская пленка с размером непроявленных зерен меньше одного микрона. Потребность топографии в детекторе большой площади с малым размером пикселя не может быть удовлетворена в настоящее время.

Проявление пленок — это довольно медленный процесс, за которым следует процесс увеличения топограммы на таких приборах как оптический микроскоп или сканер. Топограмму целого образца, площадь которого больше размера пучка на образце, получают с помощью компьютера путем совмещения цифровых изображений отдельных фрагментов. Иногда продолжительность эксперимента можно уменьшить, если на станциях есть детекторы высокого разрешения в дополнение к панелям. В таблице 2 приведены характеристики высокоразрешающего детектора VHR CCD (рис. 9) от Photonic Science [156]. Детектор имеет довольно большое

Таблица 2. Характеристики детектора для метода топографии: VHR 75 от Photonic Science

Размер сенсора, px	Диапазон	Поле зрения, мм ²	Размер точки	Энергия фотонов
4008(H) × 2672(V)	16 бит	62(H) × 42(V)	15.6 мкм	5–35 кэВ

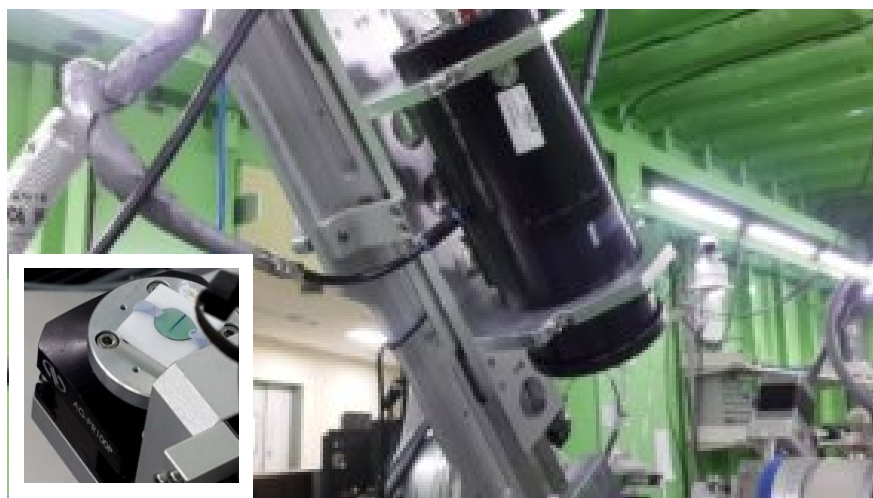


Рис. 9. Высокоразаещающий детектор для метода топографии VHR 75 от Photonic Science. На вставке показан образец SiC.

поле зрения $62(H) \times 42(V)$ мм². Он снабжен сцинтиллирующим слоем из поликристаллического Gd_2O_3 , имеющем высокий световыход.

Альтернативный подход к регистрации топограмм состоит в использовании детекторов высокого разрешения, чувствительных к видимому свету. При этом разрешение можно оптимизировать при помощи оптического микроскопа, встроенного в систему регистрации. Согласно идее Буша и Бонзе [157], микроскоп проецирует увеличенное люминесцентное изображение от кристалла-сцинтиллятора на ПЗС-матрицу и уменьшает отношение размера пикселя к размеру области наблюдения. Интересно сравнить цифровое изображение, записанное на детектор через микроскоп, с изображением на пленке высокого разрешения. Такое сравнение было выполнено на станции Торо-Томо [158] источника АНКА (Технологический институт Карлсруэ, Германия). Цифровые изображения нарушений кристаллической решетки образцов фосфида индия (InP) были записаны на детектор от PCO AG („Pioneers in Cameras and Optoelectronics“) с оптимизированным размером пикселя 2.5 мкм. Сравнение с изображениями на пленке Slavich VRP-M не показало заметных различий в качестве топограмм. В той же работе [158] были отмечены следующие ограничения цифровой регистрации на вышеуказанный детектор: довольно долгая экспозиция и малый размер поля зрения (10×6.7 мм²), которое вмещало только одно отражение. Кристаллический сцинтиллятор $CdWO_4$, расположенный перед детектором, имел довольно большую толщину (300 мкм) и относительно малый световыход. Первое ухудшало качество изображения, а второе увеличивало время экспозиции.

В отличие от рентгеновской трубки, интенсивность СИ зависит не от размера источника, а от его мощности. Выигрыш в интенсивности можно получить, приближая место проведения эксперимента к области излучения. Однако, оставляя это расстояние неизменным, мы получаем выигрыш в разрешении. Более подробный анализ факторов, которые определяют разрешение рентгенотопографических изображений, будет проведен в пятой главе на примере исследования дислокаций в кристаллах нитрида алюминия.

В качестве гониометров для работы в полихроматическом СИ вполне подходят двукружные. Для настройки рентгеновских отражений и контроля поляризации экспериментатору необходима возможность поворачивать образец

вокруг первичного пучка. Тем не менее, даже однокружный гониометр, снабженный наклонами вокруг двух взаимно-перпендикулярных осей, может быть использован. Однокружные гониометры с вертикальной осью вращения образца применяют в томографических экспериментах. Методы топографии, томографии и фазово-контрастного изображения на просвет можно сочетать используя один и тот же однокружный гониометр, на оси вращения которого укреплена гониометрическая головка с дистанционным управлением от фирмы Huber [159]. Однако при этом исследуемый кристаллический образец должен иметь известную ориентацию. Кроме того, работая по методу топографии в таких условиях, экспериментатор вынужден использовать горизонтальную проекцию источника СИ, которая заметно больше вертикальной.

Индексирование лауэтопограмм является важной составляющей экспериментальной процедуры. Принципы общего подхода к индексированию подробно изложены в работе [160]. Если компьютерная программа может выполнить индексирование для произвольной ориентации образца относительно направления пучка, она ускоряет проведение эксперимента и обработку данных во много раз. Однако программы с такими возможностями нельзя получить бесплатно. Поэтому для целей данной работы была написана программа на языке АСЛ [161], работающего под управлением интерпретатора на языке Java. Программа рассчитывала и строила стереографические проекции и лауэграммы, совмещала расчетные лауэграммы с экспериментальными и таким образом выполняла индексирование для условий, когда одно из главных кристаллографических направлений параллельно пучку СИ или составляет с ним небольшие углы.

Дополнительным основанием для уверенности в правильности результата индексирования является относительная интенсивность отражений. Последнюю можно оценить, зная параметры рассеяния. В настоящее время модули и разность фаз полных фурье-компонент поляризуемости кристалла могут быть получены при помощи бесплатной программы С.А. Степанова, работающей на сервере в интерактивном режиме [162]. Однако такой подход не применим к тем кристаллам, которых нет в базе данных. В то же время есть другая более гибкая программа, позволяющая исследователю самому рассчитать параметры рассеяния. Теоретические принципы этой программы описаны в ста-

тье [163]. Проводить расчеты можно онлайн [164].

В заключение укажем на публикации, которые весьма полезны для интерпретации контраста рентгенотопографических изображений. Формирование контраста дислокаций подробно рассмотрено в книгах [50, 147]. О применении топографии в полихроматическом СИ для исследования кристаллов SiC можно прочитать в обзорной статье [165]. Нельзя не упомянуть о плодотворном развитии методов топографии в синхротронном излучении. Поскольку новые методы не применялись в данной работе, ограничимся ссылками на некоторые статьи (см., например, [166–194]) и подробные обзоры [195–197].

1.4 Совместное применение методов

Устранение монохроматора ради увеличения потока, поступающего на объект исследования, открыло доступ к сочетанию методов брэгг-дифракционного и фазово-контрастного изображения при помощи сравнительно простого экспериментального оборудования. Остановимся на процедуре совместного использования методов более подробно. В частности, сравним способы регистрации изображений, используемые для обоих методов.

Метод фазового контраста позволяет регистрировать изображения микрообъектов. Однако глаз экспериментатора не может увидеть изображение микрообъекта без увеличения. Поэтому рентгеновское изображение, преобразованное в световое при помощи сцинтиллятора, сначала увеличивается системой линз, а затем регистрируется детектором. В результате разрешение детектора оптимизируется так, что размер пикселя становится соизмеримым с размером зерна высокоразрешающих эмульсий. Подобный способ регистрации весьма желателен также и для метода топографии. Однако в методе топографии эксперимент состоит в поиске и настройке брэгговских отражений. Для достижения этой цели в полихроматическом СИ требуется детектор с большим полем зрения.

В таблице 3 перечислены характеристики рентгеновских детекторов и их применение. В двух верхних строках таблицы содержится информация о детекторах большой площади. Из приведенных характеристик видно, что такие детекторы не используются для регистрации фазово-контрастных

изображений микрообъектов по причине недостаточно высокого разрешения. По сравнению с фазовым контрастом разрешение метода топографии низкое, поскольку интенсивность, рассеянная от областей малого размера, недостаточна для формирования качественного изображения, и высокая чувствительность к деформации означает, что изображения дефектов широкие [50]. Изображения отдельных дислокаций могут иметь ширину порядка микрометра, но изображения скоплений дислокаций гораздо шире. Детектор с размером пикселя $\sim 10-15$ мкм, представленный в третьей строке таблицы, может удовлетворить потребность в визуализации скоплений дислокаций.

В наши дни цифровая регистрация люминесцентного изображения, увеличенного через микроскоп, характерная для фазово-контрастного эксперимента, все чаще переносится на практику записи топограмм. Наоборот, съемка на пленку практически вытеснена из процедуры фазово-контрастного эксперимента и осталась только за топографией. Выше было описано сравнение топограмм, записанных на высокоразрешающий детектор от PCO AG и на пленку [158]. Для нарушенных кристаллов различия в качестве цифровых и фотографических изображений были незаметны для глаза. В то же время пленка имеет очевидное преимущество в разрешении, и с ее помощью можно проводить весьма точные измерения (см., например, [198]). В двух последних строках таблицы представлены высокоразрешающие пленки. Их используют

Таблица 3. Характеристики детекторов для регистрации рентгенотопографических и фазово-контрастных изображений: размер пикселя ξ [мкм]; поле зрения σ [мм²]; оптимизированный размер эффективных пикселей ξ_{ef} [мкм], полученный в результате увеличения $20\times$

Детектор	Характеристика				Методы		
	Тип	ξ	σ	$20\times$	ξ_{ef}	Топография	Фазовый контраст
Naomi		30	350×430	Нет	—	Да	Нет
Vieworks		140	470×590	Нет	—	Да	Нет
VHR 75		15.6	62×42	Нет	—	Да	Да
PCO 4000		9	1.8×1.2	Да	0.45	Да	Да
Пленка VPR-M Slavich			102×127	Нет	—	Да	Да
Пленка SR-45 Kodak			355×432	Нет	—	Да	Да

для регистрации фазово-контрастных изображений в некоторых специальных случаях.

Избавление от неудобств, сопутствующих процессу проявления пленок, приводит к новому неудобству, вызванному поиском дифракционных отражений в условиях малого поля зрения детектора [199–201]. Это неудобство вполне преодолимо, если эксперимент проводится в монохроматическом излучении с использованием детектора со средним размером поля зрения: например, VHR 75 (рис. 9) [202]. Однако топография в полихроматическом СИ требует еще одного средства наблюдения, которым является плоскопанельный детектор [203–206]. Схема, использованная в данной работе, описана ниже. В ней отсутствует универсальный детектор для обоих методов. Устройства для регистрации изображений расположены последовательно в соответствии со своим целевым назначением.

Схема размещения оборудования для получения изображений показана на рис. 10. Источником СИ является порт поворотного магнита на накопительном кольце. Источником размером $60(\text{V}) \times 160(\text{H})$ мкм² расположен на расстоянии 36 м от образца. Отсутствие монохроматора и других рентгенооптических устройств (кроме бериллиевых окон) обеспечивает максимальный размер

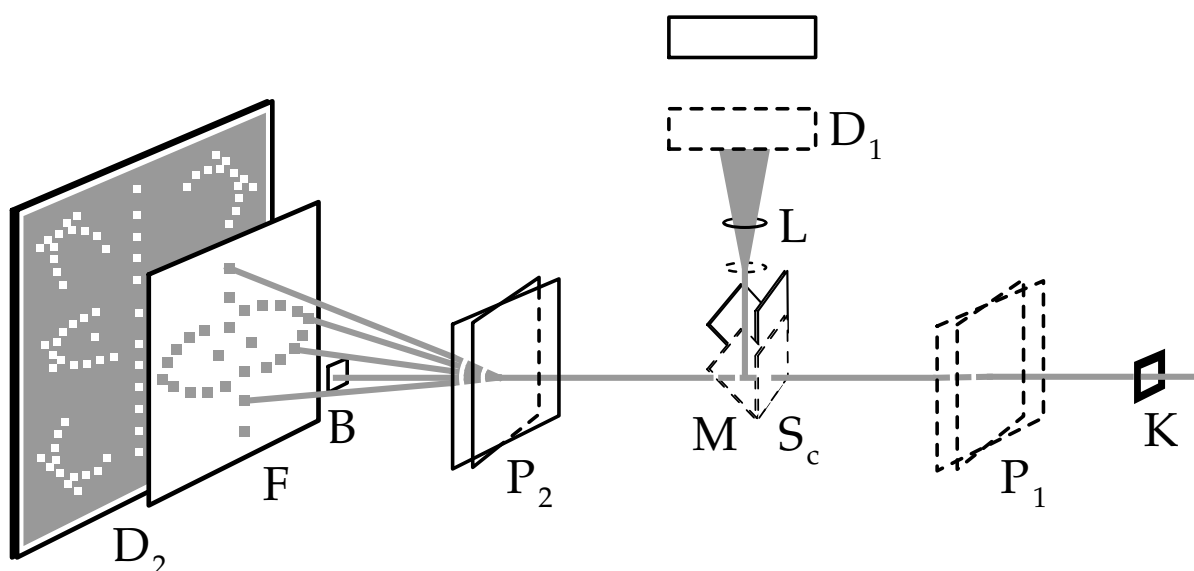


Рис. 10. Схема регистрации фазово-контрастных и рентгенотопографических изображений в процессе одного эксперимента. *K* – щель, *P*₁ и *P*₂ – положения образца, *S*_с – кристалл-сцинтиллятор, *M* – зеркало из полированной пластины кремния, *L* – объектив, *D*₁ и *D*₂ – двухкоординатные ПЗС детекторы, *B* – заглушка и *F* – пленка.

пучка на образце. Система щелей с водяным охлаждением, схематически показанная на рисунке одной щелью K , позволяет формировать эффективную геометрию пучка. Щели состоят из двух перпендикулярных прорезей с дистанционным управлением, ширину которых можно изменять от 0 до 5 см. Пройдя сквозь щели, полихроматическое излучение попадает на образец, закрепленный на гониометре (P_1). Последний снабжен поворотами вокруг двух осей и перемещениями в трех направлениях с точностью 0.1 мкм. Для преобразования рентгеновского излучения в видимый свет за образцом установлен кристалл-сцинтиллятор CdWO_4 толщиной 150–200 мкм. Расстояние от сцинтиллятора до образца P_1S_c варьируется от 5 мм до 1.5 м. Зеркало из полированной пластины кремния (M) направляет световой поток на ПЗС детектор (D_1). Объектив с системой линз (L) увеличивает световое изображение в интервале $10\times - 30\times$.

Микроскоп, состоящий из вышеописанных узлов M , S_c , L и D_1 , может перемещаться как целое в вертикальном и горизонтальном направлениях. Два последовательных положения микроскопа показаны пунктиром и сплошной линией (рис. 10). В свою очередь, гониометр с образцом может быть перемещен в новое место (P_2) для проведения рентгенотопографического эксперимента. Детектором для настройки лауэтограмм служит плоскочпанельный мульти-ССД дисплей (D_2). После настройки образца, просмотра цифровых изображений и выбора области наблюдения осуществляется регистрация топограмм на высокоразрешающую пленку (F). Гибкая кассета с пленкой крепится на панели детектора. Схема позволяет регистрацию фазово-контрастных изображений и топограмм для одной и той же ориентации образца (подробнее об этом см. главу 4).

1.5 Примеры совместного применения методов

Сочетание методов получения рентгенотопографических и фазово-контрастных изображений представляет собой мощный инструмент исследования реальной структуры кристаллов. Публикации, описывающие использование обоих методов, появились вскоре после 1995 г. и появляются до настоящего времени (см., например, [190, 194, 203, 207–211]). В этом разделе приведены лишь несколь-

ко примеров, демонстрирующих возможности и области применения данного подхода.

Относительно мало работ выполнено с использованием количественного анализа изображений. Среди них следует особо отметить исследование, задачи которого были аналогичны некоторым из тех, которые поставлены в данной работе; однако объекты исследования и способы решения полностью отличались, поскольку авторы [99] придерживались другого подхода. Объектом их изучения были квазикристаллы. Как твердые тела с неперiodической структурой, но с дальним атомным порядком [212], квазикристаллы формируют пики брэгговских отражений так же, как и кристаллы. Поэтому, с одной стороны, они могут быть исследованы методом рентгеновской топографии. С другой стороны, квазикристаллы содержат пустоты, фактическое описание которых можно получить, используя метод фазово-контрастного изображения. Экспериментальные наблюдения и теоретический анализ квазикристаллов высокого структурного качества описаны в ряде работ [120, 121, 213].

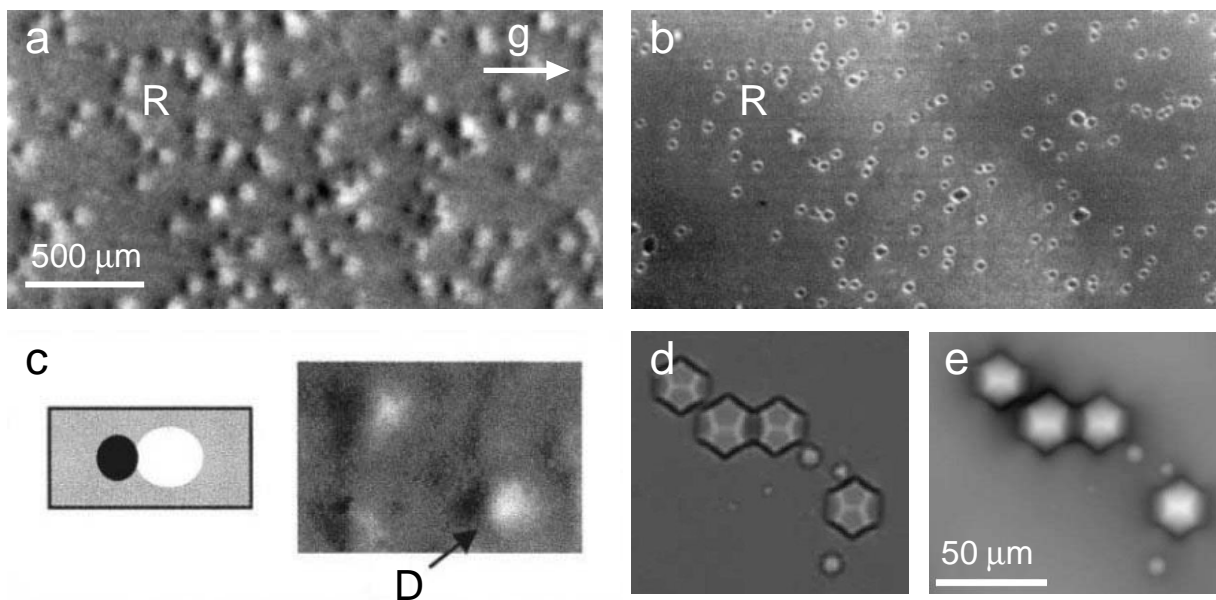


Рис. 11. (a) Рентгеновская топограмма и (b) фазово-контрастное изображение икосаэдрических пустот в квазикристалле Al–Pd–Mn. Буквой *R* обозначена одна и та же область на обоих изображениях; *g* – проекция вектора дифракции. (c) Деформация материала в окрестности пустоты (*D*); и контраст, рассчитанный для газового пузыря. (d) Фазово-контрастное изображение, записанное на детектор на расстоянии 0.2 м от образца. $\lambda = 0.516 \text{ \AA}$. Направление пучка СИ параллельно оси симметрии второго порядка. (e) Двумерная фазовая карта, восстановленная из экспериментальных изображений, записанных на расстояниях 0.01, 0.05, 0.2 и 0.5 м от образца [99, 209].

На рис. 11 показаны топограмма (*a*) и фазово-контрастное изображение (*b*), соответствующие одной и той же области в образце Al–Pd–Mn [209]. Структурные особенности, присутствующие на топограмме, имеют черно-белый контраст, указывающий на градиент деформации в окрестности каждой из этих особенностей. В то же время, из данных других методов известно, что они представляют собой пустоты. Взяв за основу модель сферического газового включения в совершенном кристалле, можно рассчитать контраст, вызванный полем деформации вокруг включения (рис. 11, *c*). Однако очевидно, что газовые пузыри имеют только непрерывное распределение по размерам. В то же время установлено, что для пустот в квазикристаллах Al–Pd–Mn распределение по размерам имеет максимумы [213], и такая модель будет противоречить установленному факту.

В работе [99] задача определения размеров пустот решена прямым методом вычисления профиля сдвига фазы в объекте из интенсивности, записанной на детекторе. На рис. 11, *d* показаны экспериментальные изображения микропор с двойной симметрией. Из картин, зарегистрированных на разных расстояниях от образца, следует, что размеры изображений микропор изменяются, и для их определения требуется решение обратной задачи. Фазовую карту, реконструированную из экспериментальных данных, демонстрирует рис. 11, *e*. В результате решения обратной задачи получено распределение по размерам, которое имеет дискретный характер. Кроме того, установлена икосаэдрическая точечная симметрия додекаэдров, свойственная данной фазе. Модель генерации иерархической структуры пустот [213], которая формируется в процессе роста Al–Pd–Mn, получила таким образом хорошее экспериментальное подтверждение.

Авторы работы [207] использовали когерентное излучение источника СИ (ESRF) для совмещения дифракции в кристалле и в воздухе. Эксперименты проводились методами секционной топографии и фазово-контрастного изображения на просвет. Объектом исследования был кристалл ниобата лития — сегнетоэлектрика с периодически поляризованной доменной структурой. Между доменами период решетки не изменялся, в то время как структура элементарной ячейки немного отличалась. Соответственно изменялись и параметры дифракции. На выходе из кристалла фаза волны испытывала периодическое

изменение. За счет прохождения в воздухе изменение фазы трансформировалось в интенсивность так же, как в обычном фазовом контрасте. Интересно, что сдвиг фазы был вызван смещением иона ниобия всего на пол-ангстрема. Фазовый контраст в виде периодически повторяющихся параллельных линий наблюдался на расстояниях 2–5 м от образца.

По мнению авторов [207], проведенные эксперименты показывают возможности исследования любой другой особенности кристаллической решетки, которая вносит периодические изменения в фазу волны, дифрагированной по Брэггу. В частности, можно определять положения атомов в двойниках нецентросимметричных кристаллов и устанавливать атомные смещения в зависимости от внешних воздействий. Однако для этого необходима весьма высокая пространственная когерентность СИ.

Исследования процессов получения искусственных материалов представляют значительный интерес. В работах [190,210] описаны *in-situ* эксперименты в реальном времени, выполненные методами визуализации непосредственно в процессе роста зерен квазикристаллов Al-Pd-Mn с целью улучшения их структурного совершенства. Затвердевание раствора, химическая композиция которого обеспечивала формирование икосаэдрической фазы, сопровождалось получением топограмм и фазово-контрастных изображений. Эксперименты проводились при различных скоростях вытягивания в условиях постоянного температурного градиента. ПЗС-детектор и пленка регистрировали изображения в одной и той же области наблюдения. Таким образом удалось провести наблюдения за выращиванием равноосных зерен от самых ранних стадий после зарождения до довольно крупных кристаллитов размерами несколько миллиметров.

Топограммы, показанные на рис. 12, *a-d*, выглядят нечеткими по сравнению с фазово-контрастными изображениями (рис. 12, *e-g*). По мнению авторов, зерна содержат упругие деформации и дефекты кристаллической структуры. В работе [214], описывающей аналогичные эксперименты в других условиях, получена зернистая структура высокого структурного качества. В результате экспериментов установлена новая информация о процессах зарождения додекаэдрических пор. Разработана модель формирования искажений решетки зерен во время их затвердевания в предположении, что

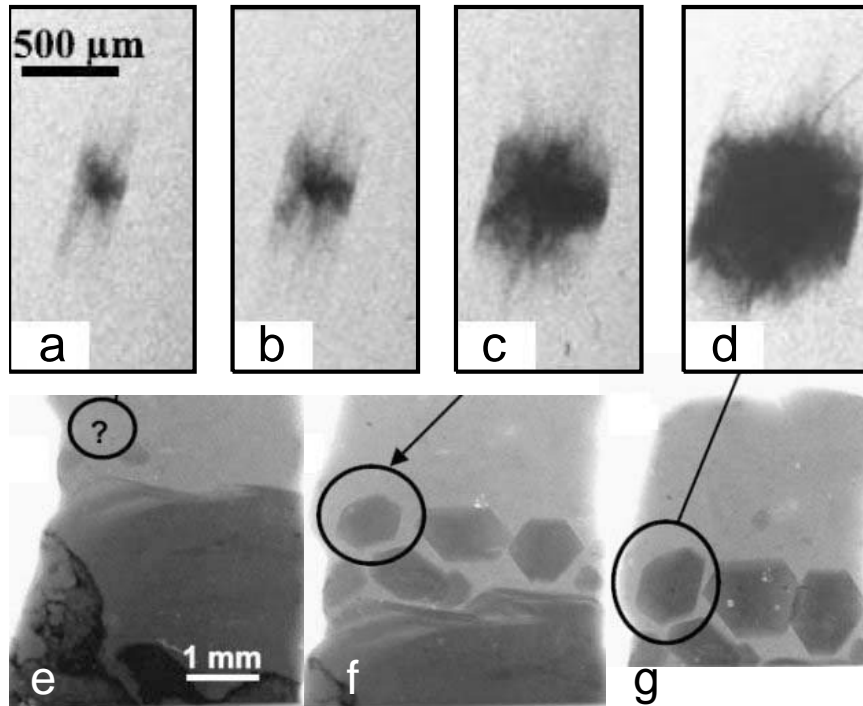


Рис. 12. Топограммы (*a-d*) и фазово-контрастные изображения (*e-g*) зерна, которое формируется в процессе роста квазикристалла $\text{Al}_{72.4}\text{Pd}_{20.5}\text{Mn}_{7.1}$. Градиент температуры 35 K/cm . В момент времени $t = 0$ скорость вытягивания изменяется от 1.2 до 3.6 мкм/сек . (*a*) $t = 2012 \text{ сек}$. (*b*) $t = 2053 \text{ сек}$. (*c*) $t = 2149 \text{ сек}$. (*d*) $t = 2353 \text{ сек}$. (*e*) $t = 1906 \text{ сек}$. (*f*) $t = 2435 \text{ сек}$. (*g*) $t = 2892 \text{ сек}$ [190, 210].

существует связь между релаксацией напряжений и зарождением пор.

В последние несколько лет проблеме производства мультикристаллического кремния для солнечной энергетики уделяется повышенное внимание. Для так называемого поликремния (поли-Si) характерны такие особенности строения, как крупнозернистая структура, межзеренные границы и дислокации. Эффект сегрегации примесей в присутствии дефектов структуры оказывает непосредственное влияние на эффективность солнечных элементов. В этой связи появилось большое число исследований, посвященных улучшению структурного качества поли-Si.

Для изучения механизмов формирования дефектов структуры был разработан оригинальный аппарат на основе установки получения поликремния методом Бриджмена. Работа на этом аппарате, установленном в пучке СИ, позволяет проводить наблюдения в реальном времени за изменениями, происходящими в процессе направленного затвердевания. Эксперименты, описанные в работах [194, 215–217], выполнены на станции BM-05 (ESRF) с использованием методов топографии и фазово-контрастного изображения.

Одной из особенностей получения поликремния является появление двойников. Последние оказывают влияние на формирование зернистой структуры. Изучению влияния двойникования на структурное качество поли-Si для фотовольтаических структур посвящена работа [217]. Образцы с размерами несколько миллиметров вводятся в высокотемпературную вакуумную печь, состоящую из двух камер. Затвердевающий образец освещают пучком монохроматического излучения с энергией 17.5 кэВ (рис. 13, *a*). Для записи фазово-контрастных изображений служит ПЗС-детектор FReLoN [218], отличительными особенностями которого являются довольно малый размер пикселя ($7.46 \times 7.46 \text{ мкм}^2$) при большом поле зрения ($10 \times 6 \text{ мм}^2$) и высоком временном разрешении. Длительность экспозиции одного изображения составляет ~ 1 сек. Детектор позволяет наблюдать за

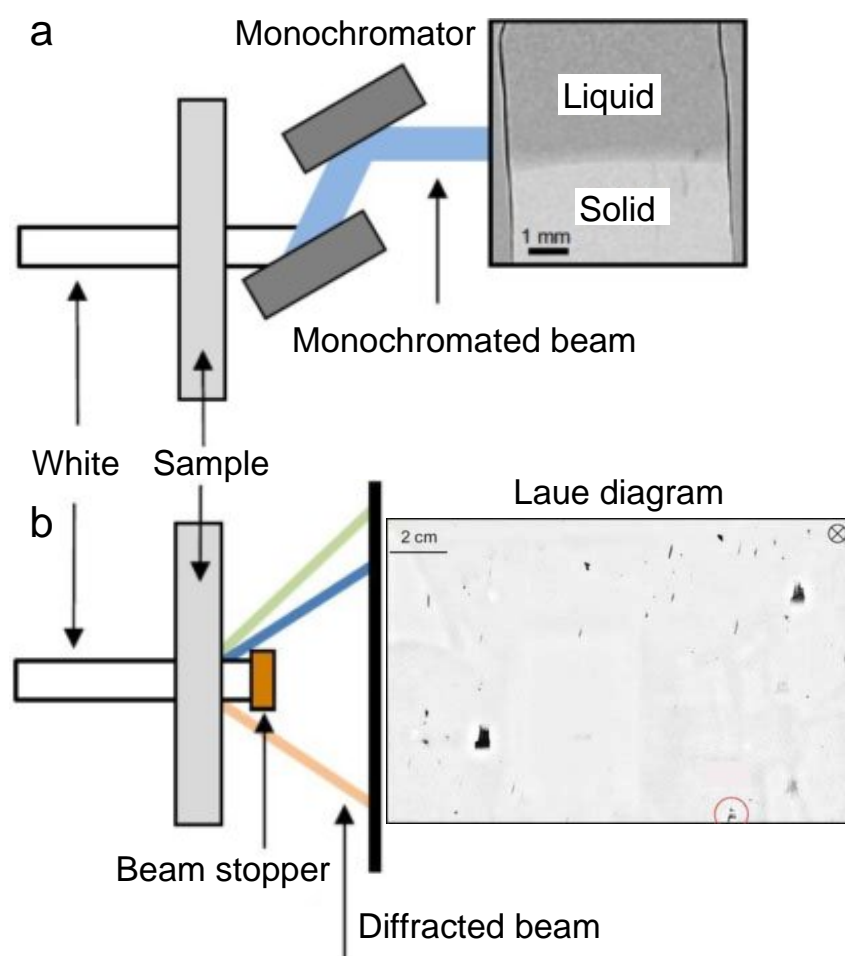


Рис. 13. Диаграмма размещения оборудования для наблюдения процессов направленного затвердевания образца поликремния, помещенного в вакуумную печь. (а) Метод фазово-контрастного изображения на просвет в монохроматическом излучении. (б) Рентгеновская топография в полихроматическом излучении [194].

эволюцией границы раздела твердое тело – жидкость в режиме реального времени.

Для получения рентгеновских топограмм используется полихроматическое излучение. На рис. 13, *b* ограничитель пучка („beam stopper“) расположен рядом с выходным окном печи. Это обеспечивает формирование брэгговских отражений теми зернами, которые расположены в затвердевшей части материала. Ширина и высота пучка приведены в соответствие с размерами образца. Лауэтопограммы, отснятые на пленку (AGFA Structurix D3-SC), содержат информацию о форме зерен и о деформации внутри них. Одно зерно может сформировать несколько отражений с разной интенсивностью в зависимости от ориентации его отражающих плоскостей и от длины волны излучения.

Серия топограмм, полученных во время затвердевания, позволяет наблюдать за эволюцией зерен и выявлять формирование двойников. В результате проведения нескольких циклов плавления–затвердевания для каждого образца поли-Si построены карты ориентации зерен относительно направления роста. Анализ этих карт дает возможность получить важную информацию о динамике формирования зернистой структуры образцов. В частности, отдельные зерна имеют множественные двойники, происхождение которых пока не вполне ясно. Одно из возможных объяснений состоит в том, что формирование двойников способствует релаксации напряжений, возникающих во время роста [219]. Однако эта гипотеза не согласуется с результатами других экспериментов [215–217], и необходимы дополнительные исследования.

1.6 Выводы

В конце 1990-х гг. реальная структура монокристаллов карбида кремния заметно улучшилась благодаря успехам технологий их получения. Однако проблема снижения высокой стоимости подложек промышленного производства оставалась нерешенной. Как практический, так и научный интерес стимулировал исследователей к поиску новых знаний о свойствах микропор в SiC.

Анализ литературных данных свидетельствует о том, что к началу настоящей работы знания о формировании дефектной структуры монокристаллов SiC оставались неполными. В частности, эффекты изменения размеров и формы дислокационных микротрубок при их распространении в растущем кристалле и их реакции между собой еще не были обнаружены. Другие исследователи указывали на то, что микротрубки взаимодействуют с включениями инородных политипов. Однако механизм и последствия взаимодействия оставались практически неизученными. Поиск ответов на эти и другие вопросы был актуален не только в связи с использованием традиционных технологий, но и для развития новых методов получения кристаллов SiC.

Метод фазово-контрастного изображения прозрачных объектов на просвет в синхротронном излучении (СИ) был впервые предложен в Европейском исследовательском ускорительном комплексе (ESRF), то есть на самом лучшем источнике СИ. Особенность метода состоит в том, что контраст можно наблюдать только в условиях высокой пространственной и временной когерентности. Распространение метода произо-

шло путем его адаптации к источникам умеренной яркости; в частности, путем устранения монохроматора ради улучшения временного разрешения. Однако использование метода в условиях низкой временной когерентности породило серьезные проблемы.

Топография в синхротронном излучении, ставшая доступной в 1970-х гг., получила дальнейшее развитие с начала 2000-х гг. благодаря появлению новых технологий производства высокоразрешающих детекторов излучения. Это способствовало сближению процедур регистрации данных методами брэгг-дифракционного и фазово-контрастного изображения. Непрерывный спектр СИ дал возможность получать лауэтограммы и фазово-контрастные изображения высокого разрешения в процессе одного эксперимента при помощи сравнительно простого экспериментального оборудования.

2. Компьютерное моделирование фазово-контрастных изображений и решение обратной задачи

Аннотация.

Разработан метод компьютерного моделирования фазово-контрастных изображений микрообъектов в пучке синхротронного излучения (СИ) с широким частотным спектром. В качестве модельной системы рассмотрена микротрубка в кристалле, которая в общем случае имеет два диаметра эллиптического сечения с размерами от долей микрометра до нескольких микрометров. Изменение интенсивности жесткого синхротронного излучения (СИ) из-за поглощения в такой микротрубке очень мало. Поэтому ее изображение полностью определяется сдвигом фазы вдоль пути лучей в кристалле. Описаны условия регистрации фазово-контрастных изображений микротрубки детектором с разрешением порядка размеров ее диаметров, из которых следует, что реальный размер микротрубки можно определить только путем решения обратной задачи вычисления профиля изменения фазы из измеряемого профиля интенсивности. Описаны проблемы применения прямых методов решения обратной задачи для изображений, полученных в дальнем поле в излучении с большой шириной спектра. Представлены принципы метода определения размеров сечений микротрубок из экспериментальных изображений путем компьютерного моделирования. На конкретных примерах показаны применения метода для анализа морфологии микротрубок в монокристаллах SiC.

Обсуждаются возможности и ограничения метода компьютерного моделирования изображений в особых случаях, а именно:

- микротрубка имеет очень малый диаметр вдоль направления распространения излучения;
- ось микротрубки имеет наклон относительно направления пучка СИ;
- сечение поворачивается вокруг оси микротрубки по мере ее распространения в кристалле.

Кроме того, показан пример применения метода двумерного моделирования изображений микропор более сложной формы, чем микротрубки.

2.1 Розовый пучок

В схеме без монохроматора спектр излучения весьма широкий. Обычно такое излучение называется розовым пучком, который возникает естественным путем. Как известно, при уменьшении энергии фотонов интенсивность спектра СИ убывает за счет поглощения во всех объектах на пути пучка, включая образец. При увеличении энергии интенсивность монотонно уменьшается. Поэтому спектр излучения позади образца имеет форму пика. Когда полная энергия электронов равна 2.5 ГэВ, спектр излучения от поворотного магнита монотонно убывает в интервале от 5 до 40 кэВ. Реальный спектр, который регистрирует детектор, показан на рис. 14. Он был рассчитан с учетом поглощения в бериллиевом окне толщиной 2 мм и в пластине SiC толщиной 0.5 мм. Его ширина ΔE на половине высоты максимума, локализованного вблизи значения $E = 16$ кэВ ($\lambda = 0.775 \text{ \AA}$), составляет 11 кэВ.

В первой главе описано формирование интерференционного изображения объекта в ближнем поле, то есть близко от образца, когда выполняется

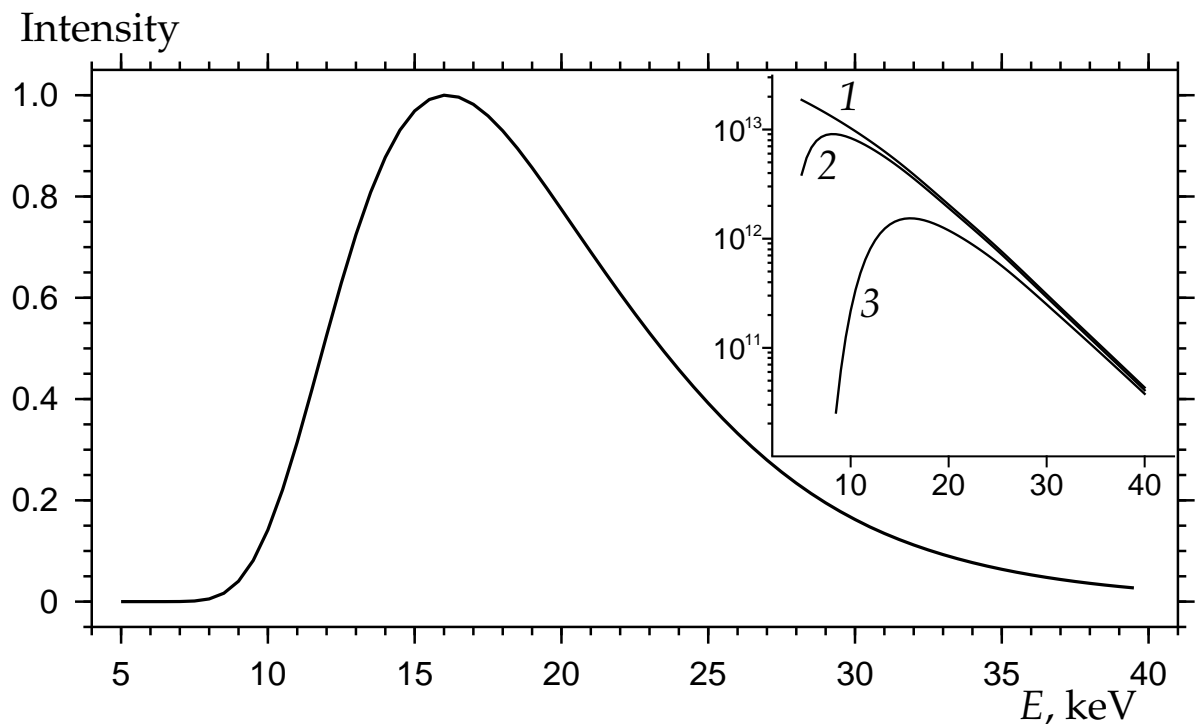


Рис. 14. Нормализованный спектр СИ, рассчитанный с учетом поглощения в Be окне и в кристалле SiC. На вставке показаны спектры в логарифмическом масштабе: 1 – исходный спектр; 2 – после поглощения в Be окне толщиной 2 мм; 3 – после дополнительного поглощения в образце SiC толщиной 0.5 мм. По осям отложены энергия фотонов E [кэВ] и интенсивность излучения [фотон/с/мрад $0.1\% \Delta E/E$].

условие: $r_1 < D$, где $r_1 = (\lambda r_d)^{1/2}$ – радиус первой зоны Френеля; D – размер объекта в сечении, перпендикулярном к направлению пучка СИ; r_d – расстояние от объекта до детектора и λ – длина волны в максимуме спектра излучения. Было показано, что за счет интерференции лучей, рассеянных объектом, и лучей, прошедших мимо объекта, формируются осцилляции интенсивности с переменными амплитудой и периодом, причем сильные боковые осцилляции вызывают улучшение контраста краев. В ближнем поле расстояние между осцилляциями коррелирует с истинным размером объекта. Данное свойство исключает необходимость решения обратной задачи: размер можно измерять прямо на изображении.

Рассмотрим выполнимость условий ближнего поля, сравнив между собой оптическое волокно диаметром $D_1 = 30$ мкм и микротрубку в кристалле диаметром $D_2 = 1.6$ мкм. В таблице 4 сопоставлены значения r_1 для волокна и трубки в зависимости от расстояния r_d . Условия регистрации изображений первого объекта взяты из работы [126], в которой максимум спектра розового пучка был расположен вблизи энергии $E_1 = 9$ кэВ ($\lambda_1 = 1.378$ Å). В данной работе эксперименты с микротрубками проводились в более жестком излучении: $E_2 = 16$ кэВ ($\lambda_2 = 0.775$ Å).

Из таблицы видно, что для оптоволоконного диаметром $D_1 = 30$ мкм условия ближнего поля выполняются на широком интервале значений r_d от 3 см до 1.4 м, тогда как для трубки диаметром $D_2 = 1.6$ мкм область дифракции Френеля ($r_1 \approx D_2$) начинается очень близко от образца и быстро переходит в область дальнего поля, когда $r_1 \gg D_2$. Диаметр волокна можно оценить по его интерференционному изображению в ближнем поле, измерив расстояние между ближайшими к краю тени максимумами. Однако для микротрубки

Таблица 4. Радиус первой зоны Френеля r_1 в зависимости от расстояния от объекта до детектора r_d , рассчитанный для оптоволоконного и трубки в кристалле с диаметрами соответственно D_1 и D_2 для значений энергии фотонов E_1 и E_2 .

r_d , см	3	25	50	75	140
$E_1 = 9$ кэВ	$D_1 = 30$ мкм				
r_1 , мкм	2.03	5.90	8.30	10.17	13.89
$E_2 = 16$ кэВ	$D_2 = 1.6$ мкм				
r_1 , мкм	1.52	4.40	6.22	7.62	10.42

подобного изображения в ближнем поле нет, поэтому нет краевого эффекта.

В ближнем поле ширина изображения микротрубки мала по сравнению с эффективным разрешением детектора, которое составляет примерно 0.5 мкм. В то же время трубка создает угловую расходимость рассеянного излучения $\theta = \lambda/D = 5 \times 10^{-5}$, где $\lambda \approx 0.8 \text{ \AA}$. На большом расстоянии $r_d = 50 \text{ см}$, то есть в дальнем поле, размер изображения формально равен $r_d\theta = 25 \text{ мкм}$, и оно может быть зафиксировано указанным детектором. В розовом пучке при слабой временной когерентности пропадают детали изображения, расположенные далеко от центра, но центральная часть изображения все же сохраняется.

Одно дело получить изображение микрообъекта. Другое дело — определить его параметры. В дальнем поле изображение значительно превосходит собственный размер объекта. Поэтому для определения параметров его сечения требуется решение обратной задачи. Когерентное изображение микротрубки при освещении ограниченным пучком в дальнем поле представляет собой профиль квадрата модуля преобразования Фурье трансмиссионной функции микротрубки. В рассматриваемом нами случае пучок не ограничен, а изображение сильно искажено суммированием по широкому пику спектра излучения. При этом изображения для разных длин волн, вообще говоря, различаются, и суммирование не сводится к свертке двух функций. В таких условиях применять прямые методы решения обратной задачи невозможно. Вместо них разработан универсальный метод компьютерного моделирования изображений на основе некоторой упрощенной модели объекта.

2.2 Метод моделирования и компьютерная программа

Представим микротрубку (МТ) в кристалле в виде пустого цилиндра, который в общем случае имеет эллиптическое сечение. Поперечный D и продольный D_0 диаметры ее сечения направлены соответственно поперек (ось x') и вдоль пучка (ось z) (рис. 15). Электронную плотность считаем одинаковой всюду, где есть вещество, и там функция $\rho(x, z) = 1$. Однако она равна нулю в пустоте — там, где вещества нет. Трубку можно представить как квазилинейный объект, у которого электронная плотность быстро изменяется поперек ее оси и

медленно — вдоль оси, и описать одномерным приближением теории фазового контраста.

В теории воздействие на когерентную волну со стороны объекта описывается трансмиссионной функцией $T(x)$. В общем случае $T(x)$ представляет собой отношение амплитуды волны, прошедшей через однородный объект к амплитуде волны для объекта с пустотами. Так как при низкой плотности пустот преломлением лучей внутри объекта можно пренебречь, трансмиссионная функция может быть представлена экспонентой типа

$$T(x) = \exp(iK\eta t(x)), \quad (2)$$

где $K = 2\pi/\lambda = (2\pi/hc)E$ — волновое число монохроматического излучения, λ — длина волны излучения, E — энергия фотонов; h — постоянная Планка; c — скорость света; $\eta = \delta - i\beta = 1 - n = -\chi/2$, где n — комплексный коэффициент преломления рентгеновских лучей, учитывающий также и поглощение излучения в веществе; $\chi = \varepsilon - 1$ равна восприимчивости среды, ε — диэлектрическая проницаемость; $t(x)$ — толщина материала на пути луча, направленного вдоль оптической оси z и отклоненного на координату x . Для объекта с пустотами функция $t(x)$ становится переменной.

$$t(x) = \int_{z_0}^{z_1} dz \rho(x, z), \quad (3)$$

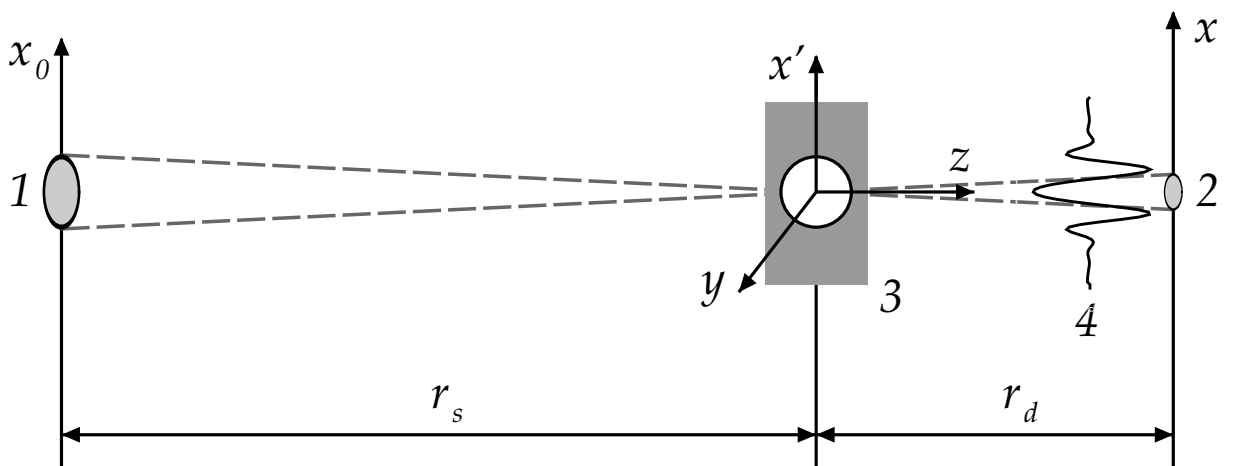


Рис. 15. Схема формирования фазово-контрастного изображения микротрубки в кристалле. 1 — источник СИ; 2 — проекция источника на детекторе; 3 — кристалл с микротрубкой, показано ее поперечное сечение; 4 — профиль интенсивности на детекторе. Ось z направлена параллельно пучку СИ.

Фазовый контраст на некотором расстоянии z от объекта определяется пропагатором Френеля, который для сферической волны в парааксиальном приближении имеет вид:

$$P(x, z) = \frac{1}{(i\lambda z)^{1/2}} \exp\left(i\pi \frac{x^2}{\lambda z}\right) \quad (4)$$

Нас интересует функция $t(x)$ (3), которую легко определить из фазы трансмиссионной функции $T(x)$ путем численного расчета. Последний удобно выполнять для относительного изменения интенсивности

$$\frac{\Delta I(x)}{I_0} = |a(x)|^2 - 1 \quad (5)$$

Если объект имеет конечные размеры, то за его пределами функция $T(x)$ равна единице. По этой причине в расчетах удобно использовать интеграл с конечными пределами

$$a(x) = 1 + \int dx' P(x - x', z) [T(x') - 1], \quad (6)$$

где $r' = r_d r_s / r_t$, $r_t = r_s + r_d$. Формулы для относительной интенсивности (5) и амплитуды (6) в явном виде описывают фазовый контраст относительно единичного фона.

Так как МТ имеет малый продольный размер, то вполне достаточно учесть изменение фазы и амплитуды волны в рамках геометрической оптики без учета изменения траектории лучей, т.е. предполагая, что все лучи параллельны оптической оси. Исключая однородную часть кристалла и учитывая только искажение волны за счет неоднородности, считаем, что $T(x) = 1$ при $|x| > R$. А при $|x| < R$ она равна:

$$T(x) = \exp\left([i\Phi + M] \left(1 - \frac{x^2}{R^2}\right)^{1/2}\right), \quad \Phi = \frac{8\pi}{\lambda} \delta D_0, \quad M = \Phi \frac{\beta}{\delta} \quad (7)$$

Здесь $R = D/2$ и $R_0 = D_0/2$ – радиусы эллиптического сечения, а параметры δ и β определены в формуле (2).

Для численного моделирования использовалась компьютерная программа FIMTIM (Fitting MicroTube Image). В модели микротрубки для расчета кривых задавались конкретные значения параметров D и D_0 . Программа вычисляла серию профилей интенсивности на детекторе для набора длин волн монохроматического излучения и точечного источника в соответствии с

формулами (4), (6) и (7). Свертка пропагатора Френеля с трансмиссионной функцией объекта вычислялась методом быстрого преобразования Фурье [220]. При этом фурье-образ трансмиссионной функции вычислялся численно, а фурье-образ пропагатора Френеля имеет аналитическое выражение. Обратное преобразование Фурье от произведения фурье-образов двух функций давало искомый ответ. Затем, вычислялась свертка с функцией интенсивности в поперечном сечении источника, в результате чего профили интенсивности монохроматического излучения искажались. Дальнейшее искажение имело место в процессе суммирования всех расчетных кривых для разных длин волн с весом, соответствующим спектру излучения. Последний вычислялся программой FIMTМ с учетом поглощения излучения в кристалле, содержащем МТ.

На следующем этапе вычисленная кривая сравнивалась с экспериментальной кривой, которая нормировалась таким образом, чтобы иметь единичный фон. Фактически вычислялась суммарная интенсивность (сумма по всем точкам), которая затем делилась на число точек и все экспериментальные значения делились на полученное значение. Для подгонки использовалась сумма квадратов отклонений вычисленных значений изображения от экспериментальных значений $\chi^2(D, D_0)$. При этом определялись такие значения D и D_0 , для которых эта функция $\chi^2(D, D_0)$ имела минимум. Определенной проблемой являлся выбор центральной точки на экспериментальной кривой. Она также определялась из условия минимума χ^2 . Для поиска точки минимума использовались стандартные методы.

В качестве примера выполним моделирование изображения единичной МТ в монокристалле SiC, полученное на расстоянии $r_d = 40$ см от образца (рис. 16, *a*). Экспериментальное распределение интенсивности, измеренное поперек изображения МТ с помощью программы ImageJ [221], показано круглыми маркерами (рис. 16, *b*). Теоретическая кривая, которая совпала с экспериментальной кривой с наилучшей точностью ($\chi_{min}^2 = 9.8 \times 10^{-5}$), представлена сплошной линией. Из условия наилучшего соответствия определяем значения диаметров: $D = 1.36$ мкм и $D_0 = 1.82$ мкм. Площадь сечения МТ равна: $\sigma = \pi(D \times D_0)/4 = 1.94$ мкм².

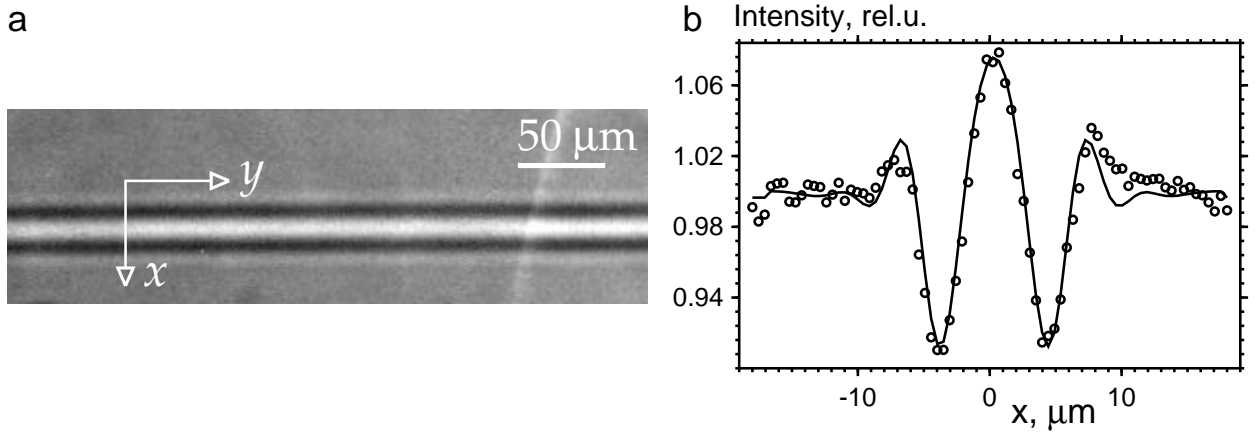


Рис. 16. (a) Фазово-контрастное изображение микротрубки в излучении с широким спектром: $E = 16$ кэВ. $\Delta E = 11$ кэВ. $r_d = 40$ см. (b) Экспериментальный профиль интенсивности (круглые маркеры). Теоретическая кривая для наименьшего значения суммы квадратов отклонений (сплошная линия).

2.3 Задача о микротрубке с малым продольным диаметром

Специфика моделирования изображений состоит в том, чтобы не только найти точку минимума, но и проверить форму минимума. Последняя дает представление о точности, с которой вычисляются параметры D и D_0 . Для этой цели после нахождения точки, в которой достигается минимум, просчитывалась карта распределения функции $\chi^2(D, D_0)$ на плоскости ее аргументов вблизи минимума. Оказалось, что в большом числе случаев линии уровней были сильно вытянуты вдоль гиперболы $DD_0 = \text{const}$. Это означает, что с высокой точностью определялась площадь сечения МТ, но каждый из диаметров определялся с меньшей точностью.

Для того, чтобы понять причину этого эффекта, было получено аналитическое решение задачи в случае, когда поперечный диаметр D намного меньше радиуса первой зоны Френеля: $D \ll r_1$, где $r_1 = (\lambda r_d)^{1/2}$; а продольный диаметр D_0 настолько мал, что фаза $\Phi = (2\pi/\lambda)\delta D_0 < 0.5$. Здесь $\lambda = 0.775 \text{ \AA}$, и отличие коэффициента преломления от единицы $\delta = 2.6 \times 10^{-6}$.

В этом случае для монохроматического излучения и точечного источника можно получить следующую приближенную формулу для профиля нормированной интенсивности:

$$I(x) \approx 1 + \frac{\pi^2 \delta}{\lambda r_1} DD_0 b(x) \cos\left(\pi \frac{x^2}{r_1^2} + \frac{\pi}{4}\right), \quad b(x) = \frac{2x_c}{x} J_1\left(\frac{x}{x_c}\right),$$

$$x_c = \frac{r_1^2}{\pi D} \quad (8)$$

Здесь $J_1(x)$ – функция Бесселя первого порядка, λ – длина волны излучения, r_1 – радиус первой зоны Френеля на расстоянии r_d , δ – декремент коэффициента преломления.

В рассматриваемом нами случае $x_c \gg r_1$. Поэтому в центральной части изображения, когда $|x| < x_c$, его структура определяется только косинусом, который не зависит от диаметров сечения МТ. То есть профили интенсивности в изображении МТ имеют универсальный характер. А величина контраста определяется только произведением DD_0 . На рис. 16 показан профиль распределения интенсивности, вычисленный по программе FIMTIM, на который наложены экспериментальные точки. Форму профиля можно объяснить с помощью формулы (8), хотя диаметры МТ в данном конкретном случае не вполне соответствуют решаемой задаче.

Ширина полосы рассеянного трубкой излучения определяется параметром x_c , который пропорционален $r_d\theta$, где $\theta = \lambda/D_0$ – угловая расходимость рассеянного излучения. Для $D_0 = 1.6$ мкм расходимость равна $\theta = 5 \times 10^{-5}$. Из-за того, что пучок не ограничен размерами объекта, внутри этой области возникают осцилляции интенсивности, причем первый максимум имеет полуширину пропорциональную диаметру первой зоны Френеля для расстояния r_d , который пропорционален $r_d^{1/2}$. Это изображение имеет вид светлой зоны в центре, окруженной темными зонами и

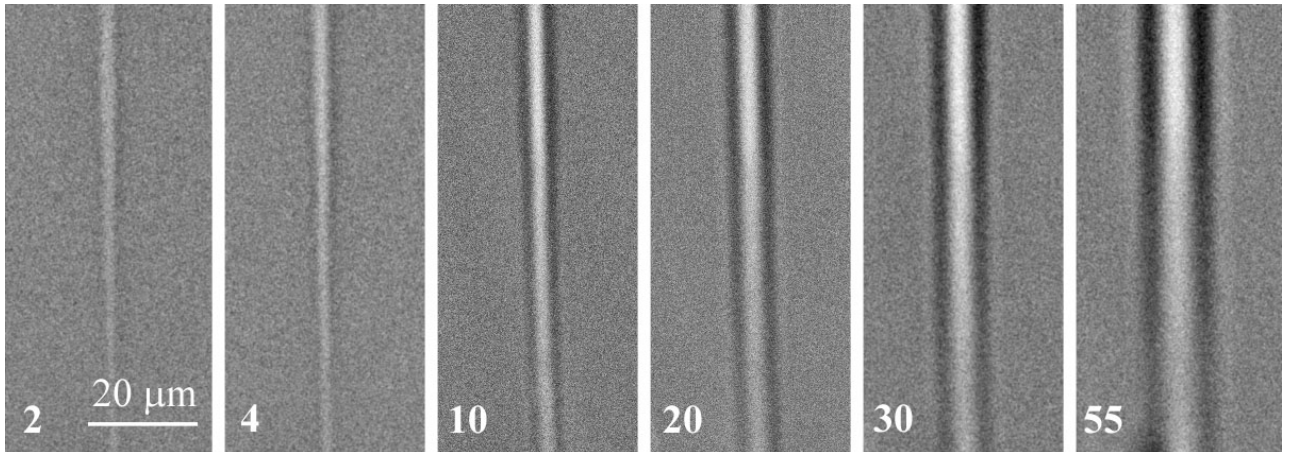


Рис. 17. Серия изображений микротрубки, полученных на разных расстояниях от образца до детектора. Расстояния в сантиметрах указаны цифрами на фрагментах. Энергия фотонов в максимуме спектра $E = 16$ кэВ. Полуширина максимума $\Delta E = 11$ кэВ.

далее снова светлыми зонами. Такого типа изображения показаны на рис. 17. Отметим, что хотя косинус имеет много осцилляций с одинаковой амплитудой, после суммирования по широкому спектру излучения остаются только центральная светлая и ближайшие темные полосы. Лишь на некоторых изображениях, полученных с более когерентным излучением, можно наблюдать дополнительные зоны Френеля.

Из вышеприведенных рассуждений следует, что для микротрубок, имеющих большие размеры сечений, диаметры можно рассчитать с большей точностью, особенно по данным, измеренным в области ближнего поля. Ниже рассмотрены два типа трубок, диаметры D и D_0 которых были определены с более низкой и с более высокой точностью. На рис. 18 представлены результаты моделирования изображения МТ с малым продольным диаметром. Максимальный контраст экспериментального изображения, записанного на расстоянии $r_d = 35$ см, составлял 12900 фотонов в секунду. Наилучшее соответствие расчетной и экспериментальной кривых ($\chi^2 = 1.08 \times 10^{-4}$) имело место для значений $D_0 = 1.68$ мкм и $D = 1.44$ мкм (рис. 18, *a*). На карте зависимости $\chi^2(D, D_0)$ вблизи точки минимума (рис. 18, *b*) черный и белый цвет соответствуют значениям $\chi^2 = 1.08 \times 10^{-4}$ и $\chi^2 = 1.41 \times 10^{-4}$ (или выше). Область малых значений χ^2 не локализована: она сжата в направлении

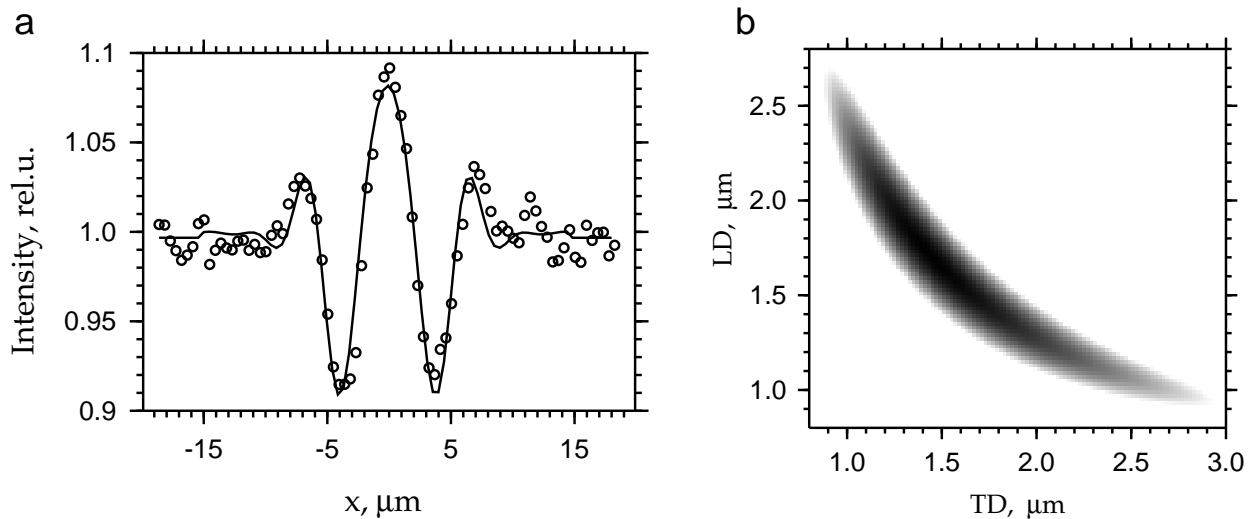


Рис. 18. (*a*) Экспериментальные данные (круглые маркеры) и теоретический профиль (сплошная линия) для случая определения диаметров с меньшей точностью. Продольный (longitudinal, LD) и поперечный (transverse, TD) диаметры определены из совпадения расчетных кривых с экспериментальной кривой. (*b*) Карта зависимости $\chi^2(D, D_0)$ вблизи точки минимума (подробности в тексте).

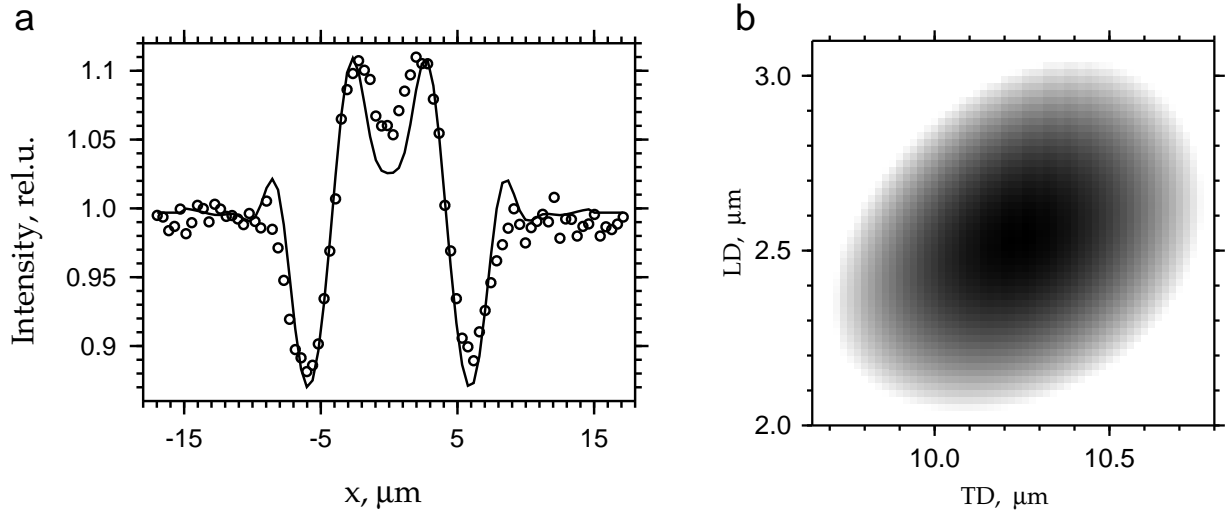


Рис. 19. (a) Экспериментальные данные (круглые маркеры) и теоретическая кривая наилучшего соответствия (сплошная линия) для случая определения диаметров с большей точностью. (b) Карта зависимости $\chi^2(D, D_0)$ вблизи точки минимума (подробности в тексте).

$D = D_0$ и вытянута в перпендикулярном направлении.

Изображение другой МТ с довольно большим эллиптическим сечением было записано на расстоянии $r_d = 15$ см. Максимальный контраст был равен 14900 фотонов в секунду. В этом случае расчетная кривая совпала с экспериментальной ($\chi^2 = 4.01 \times 10^{-4}$) для значений $D = 10.25$ мкм и $D_0 = 2.54$ мкм (рис. 19, a). На карте $\chi^2(D, D_0)$ (рис. 19, b) черный и белый цвет соответствуют значениям $\chi^2 = 4.01 \times 10^{-4}$ и $\chi^2 = 5.21 \times 10^{-4}$ (или выше). Теперь область малых отклонений локализована гораздо лучше, чем раньше.

Эти примеры наглядно показывают улучшение точности оценки параметров с увеличением площади сечения. При этом однако следует иметь в виду, что МТ большого сечения могут иметь морфологические особенности, усложняющие их форму по сравнению с эллипсом. Кроме того, величина χ_{min}^2 в значительной степени определяется отношением сигнал/шум. Паразитное рассеяние, наиболее сильное в схеме без монохроматора, мешает получению точного соответствия расчетных и экспериментальных данных. Для повышения точности следует использовать монохроматическое излучение, например, отраженное от монохроматора с невысоким спектральным разрешением.

В заключение сформулируем критерий применимости метода моделирования к изображениям МТ с относительно малым сечением, записанных на детектор при больших расстояниях от образца. Площадь сечения микротрубок

ки можно определить всегда. А отдельно диаметры D и D_0 можно определить только в том случае, когда не выполняются условия $D \ll r_1$ и $\Phi < 0.5$. Не следует использовать слишком большие расстояния r_d от образца, то есть разумно искать компромисс между размером изображения и его информативностью.

Важное следствие из вышеописанного механизма формирования изображений демонстрирует рис. 17. На нем показана серия изображений участка одной МТ, полученных на разных расстояниях от образца. Цифры на изображениях указывают расстояние в сантиметрах. Хорошо заметна следующая интересная особенность. На изображениях, полученных на расстояниях 2 см и 4 см (крайние слева), горизонтальный диаметр сечения монотонно уменьшается вдоль оси трубки в направлении сверху вниз. В ближнем поле размер изображения коррелирует с истинным размером сечения, и можно сделать вывод, что сечение данной МТ действительно изменяется вдоль ее оси. Однако на малых расстояниях изображения узкие, а паразитный фон, который регистрирует детектор, – сильный. По этим причинам, как правило, изображения записывают на расстояниях от 10 до 50 см. Из рис. 17 можно видеть, что на больших расстояниях структура изображений совсем другая. При $r_d > 10$ см промежуток между черными полосами уже не уменьшается сверху вниз, то есть профиль распределения интенсивности в горизонтальном направлении один и тот же на всех высотах вдоль оси МТ. Изменяется только величина контраста. Изображение имеет стандартный характер, а по величине контраста можно определить только площадь сечения микротрубки.

2.4 Задача о наклонной микротрубке

Если ось трубки имеет наклоны относительно осей системы координат, показанной на рис. 15, это будет вносить свои особенности в решение обратной задачи методом симуляции изображений. Рассмотрим задачу об определении диаметров такой трубки, расположенной в объеме образца в форме пластины. Предварим рассмотрение следующими замечаниями. Принято считать, что поперечные сечения объекта можно получить из экспериментальных изображений („проекции“) методом рентгеновской томографии, в котором проекции фиксируют интегральное ослабление пучка вдоль его направления

[222]. Однако в методе томографии объект должен быть установлен на оси вращения образца, который, в свою очередь, должен быть специально подготовлен. В рассматриваемом нами случае положение микротрубки в объеме кристалла заранее неизвестно. Далее, образец имеет форму пластины, толщина которой мала только в направлении, перпендикулярном ее основной поверхности. При поворотах пластины в интервале от 0° до 180° длина пути лучей заметно изменяется, что вносит негативные искажения в результаты реконструкции.

В процессе моделирования варьируются два параметра, а именно два диаметра сечения МТ рентгеновским пучком: поперек (D) и вдоль (D_0) пучка. На рис. 15 показан частный случай, когда ось МТ, параллельная оси y , перпендикулярна направлению пучка (ось z) и оси изображения (ось x). В более общем случае углы, которые ось МТ составляет с осями z и x (обозначим их соответственно ϑ и ψ), могут быть не равны 90° : $\vartheta \neq 90^\circ$ или $\psi \neq 90^\circ$. Кроме того, эллиптическое сечение может быть повернуто вокруг оси x . Вследствие этого определяемые с помощью программы параметры могут не совпадать с реальными диаметрами сечения МТ в плоскости, перпендикулярной ее оси.

Предположим, что МТ имеет правильное эллиптическое сечение с

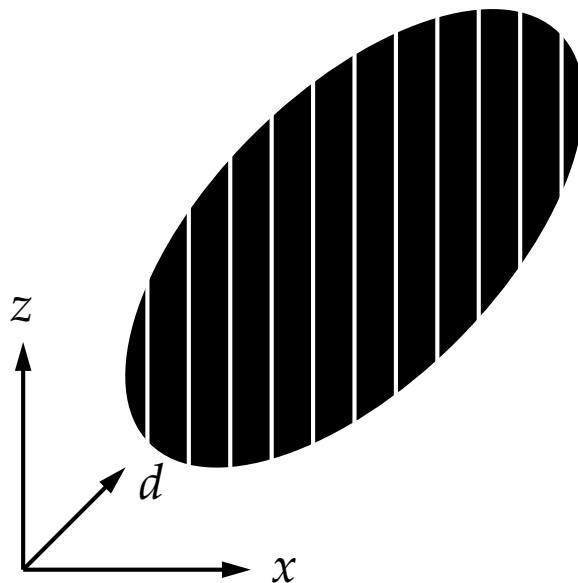


Рис. 20. Диаграмма прохождения рентгеновских лучей через эллиптическое поперечное сечение микротрубки, показанное областью черного цвета. Направления лучей показаны белыми полосками. Ось изображения x перпендикулярна к оси пучка (z) и к оси трубки. Угол φ между большой осью эллипса d и осью x равен 45° .

большим и малым диаметрами соответственно d и d_0 , а угол между направлением d и осью x равен φ . Рисунок 20 иллюстрирует ситуацию для угла $\varphi = 45^\circ$, когда параметры D и D_0 трансмиссионной функции (7) рассчитываются через диаметры трубки d и d_0 следующим образом:

$$D = \left[(d \cos \varphi)^2 + (d_0 \sin \varphi)^2 \right]^{1/2}, D_0 = d_0 d / D. \quad (9)$$

Из формулы (9) следует, что для одного и того же эллиптического сечения могут быть получены разные значения D и D_0 в зависимости от угла φ . Проблема в принципе разрешима, если величина угла φ известна; тогда можно решить обратную задачу вычисления d и d_0 из D и D_0 . Однако для определения угла φ одной проекции уже недостаточно.

В то же время видно, что размер площади сечения не зависит от φ . Допустим, что $d = 7$ мкм и $d_0 = 1$ мкм. На рис. 21 показаны зависимости каждого из параметров D и D_0 (назовем их эффективными диаметрами) от угла φ : $D(\varphi)$ и $D_0(\varphi)$. Интересно, что даже для сильно асимметричного эллиптического сечения можно получить равенство значений эффективных диаметров $D = D_0$ для некоторого значения угла φ . Соответствующие экспериментальные результаты приведены в следующем параграфе.

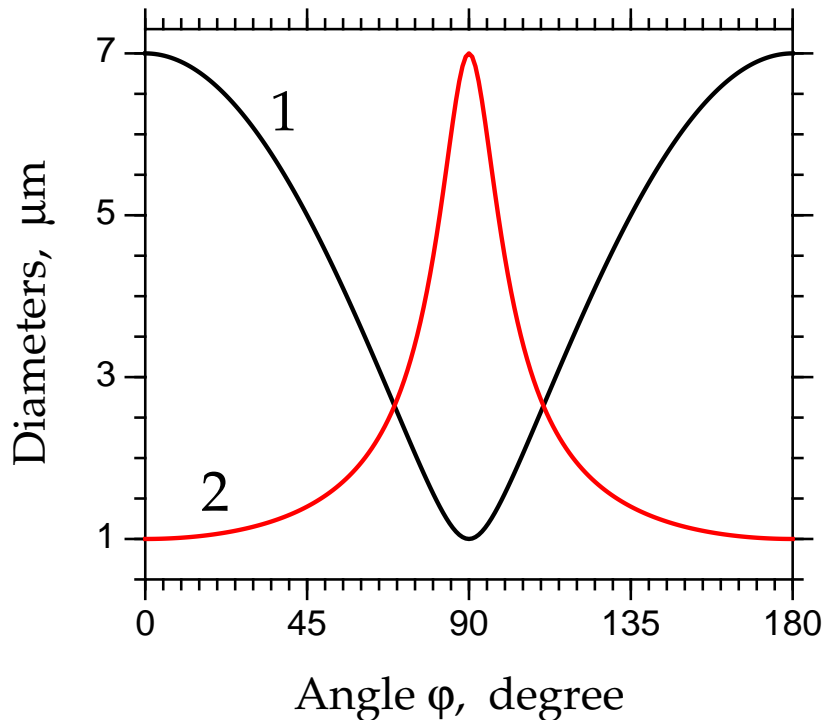


Рис. 21. Эффективные диаметры эллиптического поперечного сечения микротрубки D (кривая 1) и D_0 (кривая 2) в зависимости от угла поворота φ .

Теперь рассмотрим другие условия, при которых ось трубки составляет угол $\psi < 90^\circ$ с плоскостью (x, z) , то есть с осью x внутри плоскости (x, y) , и угол $\vartheta = 90^\circ$. Пусть трубка имеет круглое поперечное сечение с диаметром d . Для параметров D и D_0 имеем: $D = d/\sin \psi$, $D_0 = d$ и $D > D_0$. Поиск решения кажется более легким, чем раньше. С одной стороны, можно повернуть образец вокруг пучка и установить ось трубки параллельно оси y . Однако и для нового положения образца может найтись еще несколько трубок, наклонных относительно оси x на угол $\psi < 90^\circ$. С другой стороны, всегда есть возможность поворачивать не образец, а его изображение, устанавливая оси трубок в вертикальное положение одну за другой и измеряя профили интенсивности поперек оси при помощи компьютерной программы [221]. Тем не менее, такие повороты изображения могут оказать влияние на достоверность результатов моделирования, так как только вертикальный размер источника имеет малую величину, а его горизонтальный размер намного больше. Отметим, что программа моделирования учитывает только один размер источника.

Еще одна проблема возникает тогда, когда МТ, имеющая правильное круглое сечение, наклонена относительно направления пучка СИ на угол $\vartheta < 90^\circ$. В частности, такая ситуация может быть вызвана разориентацией пластин SiC относительно грани базиса. Если поверхность пластины, приготовленной из слитка SiC с осью роста $[0001]$, разориентирована относительно плоскости (0001) , то ось трубки, которая распространяется вдоль оси роста, имеет наклон относительно направления пучка, перпендикулярного поверхности. Обозначив угол наклона ϑ , находим, что параметры трансмиссионной функции равны: $D = d$, $D_0 = d/\sin \vartheta$, где d – диаметр МТ. При малом угле наклона $D_0 \gg D$. В принципе, можно определить величины d и ϑ из параметров D и D_0 . Однако для этого нужно быть уверенным, что МТ имеет круглое, а не эллиптическое сечение.

Экспериментально установлено, что такие МТ имеют весьма необычные изображения, центральная часть которых черного цвета. В то же время у трубок, оси которых перпендикулярны направлению пучка СИ, центральная часть изображений белого цвета. Изменение знака контраста на экспериментальных изображениях микротрубки при поворотах образца долгое время ка-

залось загадочным. Эта загадка была решена путем численного моделирования изображений с помощью программы FIMTIM. Опишем исследование черного контраста более подробно.

Образцы в форме пластин были приготовлены из кристалла 4H-SiC с осью роста [0001]. Поверхность образцов имела разориентацию 8° относительно плоскости (0001). Одна из пластин диаметром 50 мм была разрезана на полоски шириной 0.5 мм и толщиной 0.4 мм, которые устанавливались на держателе длинной стороной по вертикали. Фазово-контрастные изображения регистрировались в пошаговом режиме при поворотах образцов вокруг вертикальной оси на каждые 2° в интервале $0^\circ - 180^\circ$.

На рис. 22 представлена серия фазово-контрастных изображений, записанных при поворотах образца. Сразу видно, что ориентация МТ более сложная, чем принято считать. Трубки могут отклоняться от начального направления своего распространения. Когда образец в виде полоски обращен торцом к пучку, МТ видны по всей своей длине (на рисунке не показанной). Было отмечено, что в некоторых местах они отклонялись от оси роста на

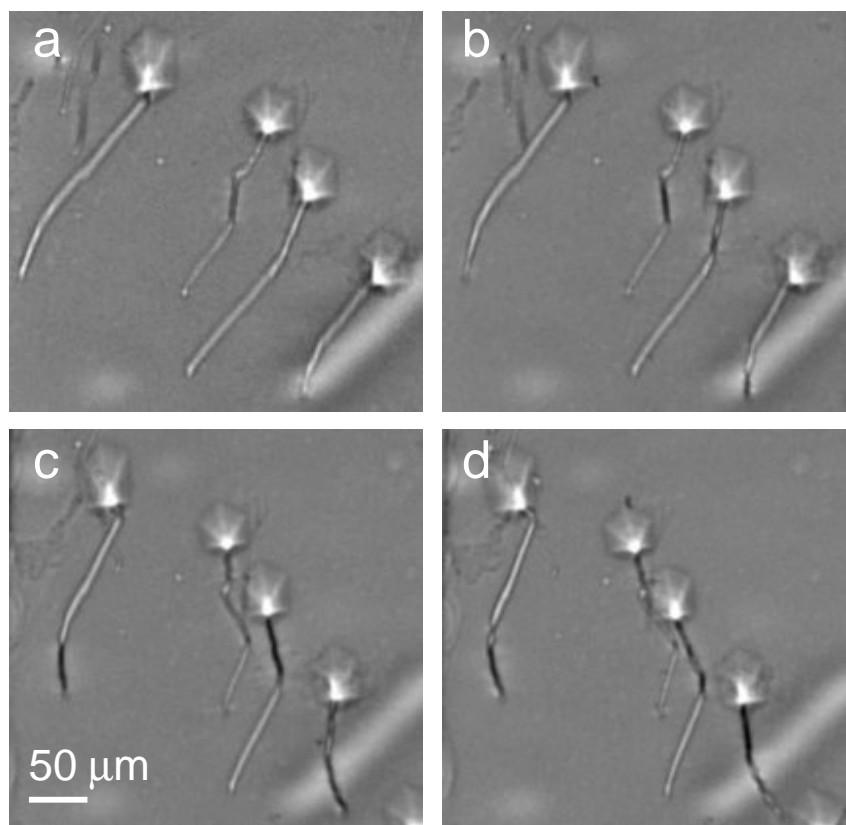


Рис. 22. Изображения микротрубок из серии проекций, измеренных путем поворотов образца SiC в пучке СИ. Соседние снимки различаются на угол 2° .

значительно большие углы, чем угол разориентации 8° . Можно видеть смену знака контраста вдоль осей микротрубок. Типичный контраст (темные края и светлая середина) сменяется обратным (черная середина и светлые края). Изменение обусловлено углом поворота оси трубки относительно направления пучка. Причиной смены контраста является изменение угла ϑ между осью МТ и направлением пучка СИ. При не очень малых значениях угла ϑ набег фазы в сечении микротрубки мал и контраст стандартный. Если же угол ϑ становится очень малым, то размер продольного сечения трубки пучком возрастает, и это приводит к осцилляциям волнового поля в области сечения. На большом расстоянии в розовом пучке эти осцилляции усредняются, и результатом усреднения является черный контраст.

В реальном эксперименте может иметь место общий случай, когда все ситуации, рассмотренные выше по отдельности, возникают одновременно. Это осложняет определение истинных диаметров d и d_0 из эффективных диаметров D и D_0 сечения трубки пучком СИ. Правильные диаметры можно восстановить путем подгонки только для МТ, ось которой строго перпендикулярна пучку. В других случаях получаемые с помощью программы значения необходимо интерпретировать привлекая дополнительную информацию.

2.5 Задача о повороте поперечного сечения

Зададимся вопросом о том, как при помощи одного фазово-контрастного изображения решить сразу две задачи: определить параметры эллиптического сечения МТ и выявить изменение их ориентации? Решение задачи будем искать при помощи метода моделирования профилей интенсивности, измеренных на разных уровнях вдоль оси трубки.

На рис. 23 показана одна и та же трубка в начале ее распространения и далее в направлении роста кристалла. Ось трубки параллельна поверхности пластины 4Н-SiC ($1\bar{1}00$), установленной перпендикулярно пучку СИ. Контраст изображения МТ изменяется по мере ее распространения. В начале он яркий в центре и темный по краям (рис. 23, *a*). Затем центр трубки сначала темнеет, а потом снова светлеет. Выше уровня, отмеченного белой стрелкой, ось МТ отклоняется от направления роста сначала в левую, а затем в правую сторону

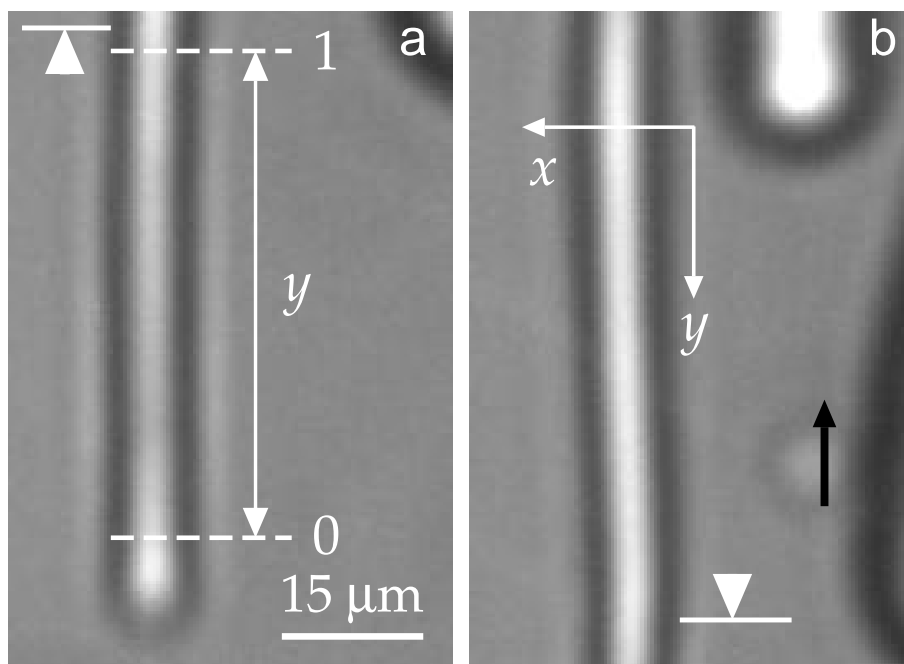


Рис. 23. Фазово-контрастные изображения одной и той же микротрубки в объеме пластины SiC($1\bar{1}00$). Фрагменты, соответствующие началу трубки (a) и ее продолжению (b), совмещаются по уровню, отмеченному белой стрелкой. Уровни 0 и 1 ограничивают интервал моделирования длиной $y = 51.8$ мкм. Направление роста кристалла показано черной стрелкой, обращенной вверх. Расстояние r_d от образца до детектора, размер эффективных пикселей которого составляет 0.37 мкм, равно $r_d = 45$ см.

(рис. 23, b). Подобные отклонения довольно типичны для многих других МТ в кристаллах SiC. Кроме того, на изображениях, записанных в области ближнего поля, наблюдаются изменения поперечных размеров сечений вдоль их осей (данные не показаны). Можно предположить, что изменение цвета контраста вызвано вариацией либо площади сечения, либо его формы, либо обоих параметров сразу.

Профили интенсивности были измерены поперек оси МТ на ограниченном интервале длиной $y = 51.8$ мкм при помощи программы ImageJ [221]. Подгонка выполнялась для каждого уровня отдельно с использованием программы FIMTIM. Отметим, что одномерная модель применима лишь при условии, что сечение изменяется достаточно медленно вдоль оси МТ, то есть интервал моделирования $y \geq 2r_1$, где $r_1 = (r_d \lambda)^{1/2}$ – радиус первой зоны Френеля. В рассматриваемом нами случае $r_d = 45$ см и $\lambda = 0.775 \text{ \AA}$, следовательно радиус равен $r_1 = 5.9$ мкм, и требуемое условие можно считать выполненным.

Судя по результатам моделирования профилей, измеренных между уровнями 0 и 1 (рис. 23, a), можно заключить, что площадь сечения МТ

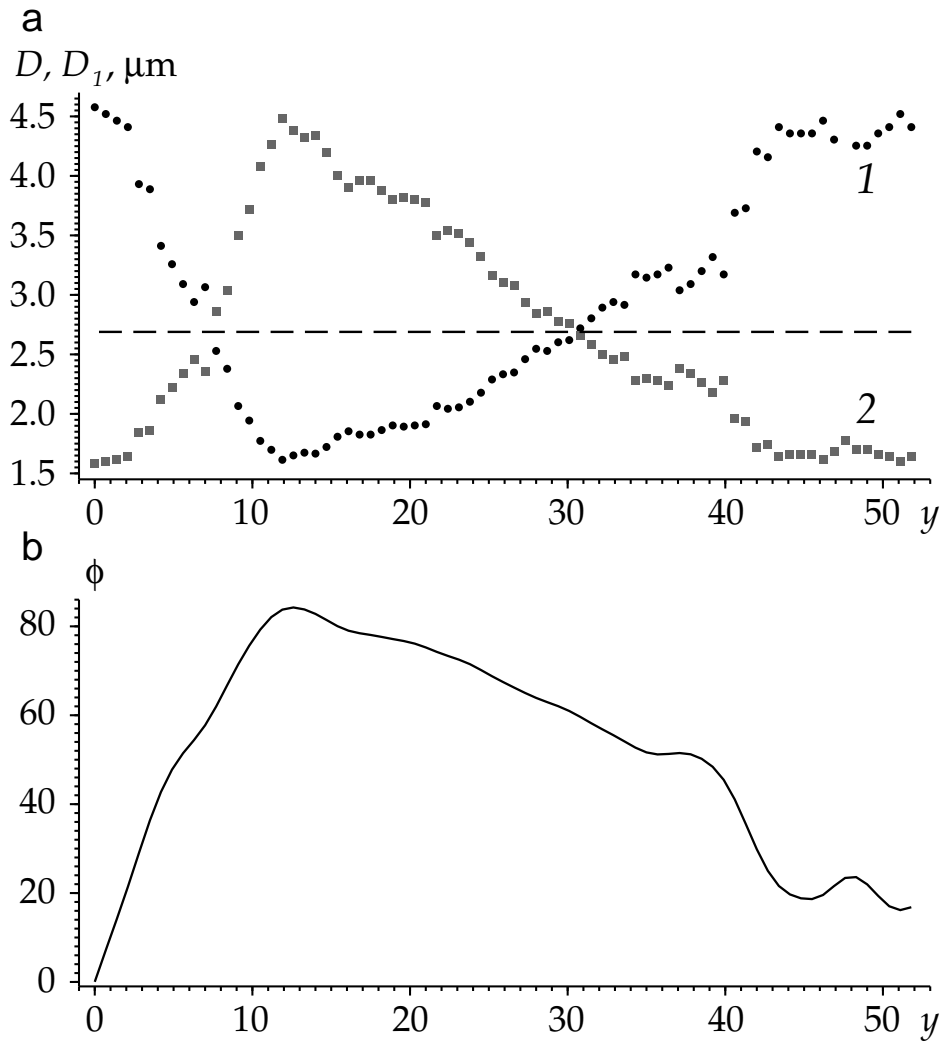


Рис. 24. (а) Зависимость поперечного $D(y)$ (кривая 1) и продольного $D_0(y)$ (кривая 2) диаметров сечения микротрубки от расстояния y вдоль ее оси. Площадь сечения σ представлена величиной $(DD_0)^{1/2}$ и показана на графике прямой пунктирной линией. (б) Зависимость угла поворота φ эллиптического сечения от расстояния y , мкм.

пучком изменилась незначительно, однако эффективные диаметры D и D_0 изменились весьма заметно. Построим зависимости диаметров D и D_0 от расстояния y . Перед построением исключим небольшое изменение площади σ путем деления поперечного диаметра D на отношение σ/σ_1 , где σ_1 и σ — величина площади сечения в начале и текущей точке интервала. Соответствующие кривые $D(y)$ и $D_0(y)$ представлены на рис. 24,а. Форма кривых наглядно показывает, что МТ дважды повернулась вокруг своей оси на 90° . Вращение МТ сопровождалось очень малым изменением ее сечения σ . Интересно, что первый поворот, имевший место недалеко от места зарождения, более быстрый, чем второй.

Обозначим угол поворота сечения φ и определим его следующим образом.

Допустим, что угол φ равен нулю на уровне 1. Тогда $d = D$, $d_0 = D_0$, где d и d_0 – истинные диаметры сечения МТ. В других точках d и d_0 можно вычислить по формуле (9), которая позволяет определить зависимость угла поворота φ от расстояния y в направлении от D к D_0 по формуле:

$$\sin \varphi = [(1 - S^2/d^2) / (1 - d_0^2/d^2)]^{1/2}, \quad (10)$$

полагая сначала $S = D$, а затем $S = dd_0/D_0$. Зависимость $\varphi(y)$ представлена на рис. 24, *b*. Асимметричная форма кривой свидетельствует о том, что эллиптическое сечение повернулось дважды с разной скоростью от 0° до 90° и от 90° до 0° .

Таким образом, методом численного моделирования экспериментальных изображений выявлено изменение размеров и формы сечения МТ, которое произошло в процессе роста кристалла SiC. Использование излучения с широким спектром обеспечило высокую интенсивность, но обеднило интерференционную картину, оставив для подгонки только центральную часть изображения МТ. Тем не менее, профили интенсивности даже простой формы можно использовать для моделирования. Отметим, что определение угла поворота сечения φ прямым методом не представляется возможным.

2.6 Двумерное компьютерное моделирование изображений микропор

Монокристаллы SiC, выращенные методом сублимации, содержат первичные поры разной природы. Их можно использовать в качестве модельных систем для развития методов моделирования фазово-контрастных изображений. До сих пор численное моделирование изображений микротрубок (МТ) выполнялось в одномерном приближении. Трубка в кристалле рассматривалась как квазилинейный объект, у которого электронная плотность быстро изменялась поперек оси и медленно — вдоль оси. При подгонке профиля относительной интенсивности $I(x)$ в каком-либо сечении поперек оси зависимостью вдоль оси можно было пренебречь при условии, что поперечное сечение сохраняло постоянный размер в пределах интервала больше диаметра первой зоны Френеля. В данном разделе описано решение обратной задачи для пор, которые отличаются от трубок. В то же время их форма является достаточно простой.

2.6.1 Образцы для исследования и экспериментальная процедура

Двумерная задача моделирования изображений встала при исследовании кристаллов SiC, полученных по оригинальной технологии, которая совмещала достоинства двух разных подходов. В работах [223–228] было показано, что путем выращивания слитка на грани кристалла-затравки, параллельной полярному направлению $[0001]$, можно предотвратить распространение дислокационных МТ в растущий кристалл. При этом для выращивания использовались грани $a \{11\bar{2}0\}$ или $m \{1\bar{1}00\}$. Однако, в таких кристаллах была зафиксирована высокая плотность дефектов упаковки. Уменьшение количества дефектов достигалось путем повторяемого процесса роста на неполярных гранях [52].

С другой стороны, существуют способы выращивания совершенных кристаллических слоев на профилированных подложках. Последние представляют собой пластины SiC, на поверхность которых нанесен рельеф в виде выступающих площадок [229–235]. Каждая площадка (меза) окружена пустыми промежутками, изготовленными методом литографии или механическим путем. Идея метода заключается в том, что на площадках с ориентацией (0001) реализуются условия для слоевого роста, в результате которого сглаживаются микроступени, характерные для вицинальной поверхности, и формируется гладкая базисная грань [229–231, 234]. Принято считать, что в отсутствие ступеней нет условий для зарождения прорастающих дислокаций. При формировании толстых слоев SiC (~ 1 мм) методом сублимации пустые промежутки между мезами зарастают. В этих областях наблюдается сравнительно низкая плотность дислокаций, которые, по-видимому, не имеют возможности прорастать из подложки [232, 233]. Таким образом происходит снижение плотности прорастающих дислокаций.

Сочетание обоих подходов [52, 231, 233, 234] должно способствовать получению кристаллов SiC с низкой плотностью дислокаций. Такие кристаллы тем не менее также могут содержать микропоры. Определение параметров микропор путем моделирования их изображений проливает свет на проблему их образования.

Слиток 6H-SiC был выращен сублимационным сэндвич-методом в

направлении $[0001]$ при температуре $2100\text{--}2200^\circ\text{C}$ со скоростью 0.5 мм час^{-1} в атмосфере аргона. Давление газа поддерживалось на уровне $0.02\text{--}0.13\text{ бар}$. Из слитка приготовили подложки с ориентацией $\{11\bar{2}0\}$. Плотность микротрубок и дислокаций в таких подложках составляла соответственно 20 см^{-2} и 10^4 см^{-2} . На поверхности подложек алмазной пилой был нанесен рельеф в виде ортогональной сетки канавок с глубиной $50\text{--}80\text{ мкм}$ и шириной $50\text{--}100\text{ мкм}$, которые разъединяли площадки размером $\sim 500 \times 500\text{ мкм}^2$. Для удаления нарушенного слоя подложки были подвергнуты механической полировке и травлению в расплаве гидроксида калия. Затем на них вырастили кристаллы в условиях, аналогичных вышеописанным. Из полученных кристаллов с осью роста $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ приготовили образцы с ориентацией поверхности (0001) .

Методом фазово-контрастного изображения установлено, что при полном отсутствии МТ, параллельных направлению $[0001]$, образцы содержали трубчатые поры параллельные базисной грани. Размеры сечений трубчатых пор изменялись вдоль их осей; к тому же, трубки изменили направления своего распространения. В образцах встречались ограниченные поры и мелкие гладкие поры в форме овалов или капсул (рис. 25).

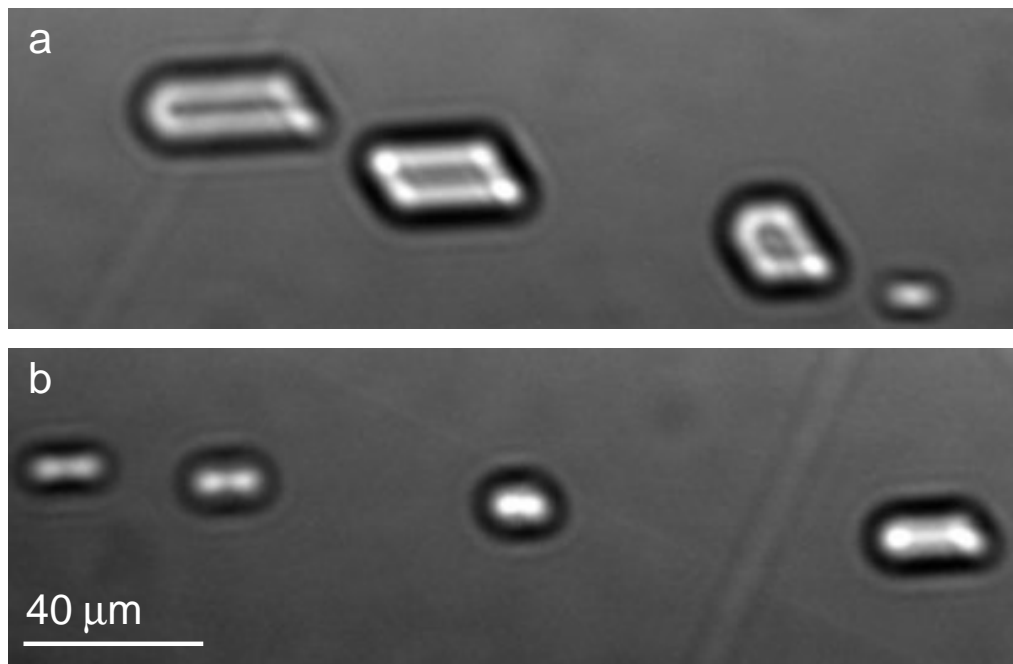


Рис. 25. Фазово-контрастные изображения микропор в кристалле 6H-SiC , выращенном в направлении $[11\bar{2}0]$. (a) Ограниченные поры. (b) Микропоры со сглаженными краями. Энергия фотонов $E = 16\text{ кэВ}$, $\Delta E/E = 0.4\%$. Расстояние от образца до детектора $r_d = 40\text{ см}$. Толщина образца 50 мкм .

Далее представлены примеры моделирования изображений микропор двух видов. Для определения размеров сечения трубчатой поры применен вышеописанный одномерный подход. Для моделирования изображения микропоры в форме капсулы использован двумерный расчет.

2.6.2 1D-моделирование трубчатой поры

На рис. 26,а показано изображение трубки, в объеме кристалла SiC, выращенного в направлении $[11\bar{2}0]$. Изображение получено в монохроматическом пучке СИ, сформированным многослойным монохроматором Mo/V₄C с разрешением $\Delta E/E = 0.4\%$. Энергия фотонов $E = 16$ кэВ ($\lambda = 0.775$ Å). Поперечная длина когерентности излучения от источника с угловым размером $\alpha = 0.35$ угл. сек. равна $L_c = 21$ мкм. Большое расстояние от образца до детектора $r_d = 40$ см соответствует области дальнего поля.

Ось трубки параллельна плоскости (0001). Можно видеть, что ориентация оси изменяется, и эти изменения происходят на интервале более длинном, чем диаметр первой зоны Френеля $2r_1$. Для вышеуказанных значений λ и

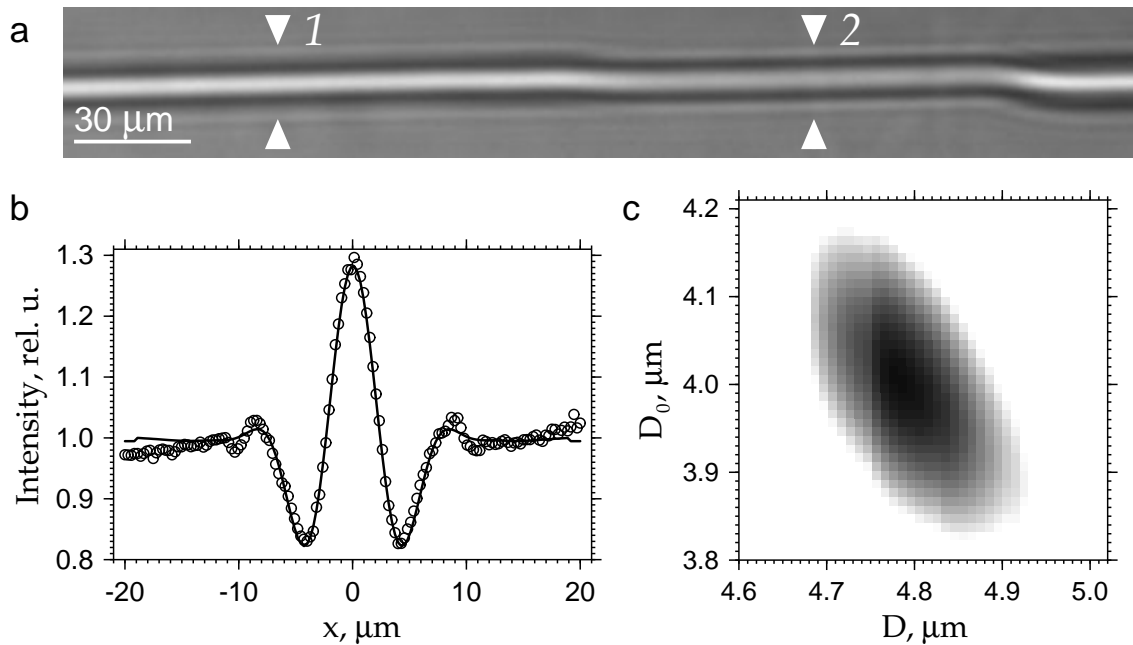


Рис. 26. (а) Фазово-контрастное изображение трубчатой поры в кристалле 6H-SiC, выращенном в направлении $[11\bar{2}0]$. $E = 16$ keV. $\Delta E/E = 0.4\%$. $r_d = 40$ см. Стрелки 1 и 2 указывают области трубки, в которых выполнена подгонка поперечного и продольного диаметров. (б) Экспериментальный (маркеры) и теоретический (кривая) профили интенсивности для случая наилучшего соответствия ($\chi^2 = 1.40 \times 10^{-4}$). (в) Карта зависимости $\chi^2(D, D_0)$ вблизи точки минимума для сечения 1.

r_d диаметр $2r_1 = 11.1$ мкм. Экспериментальные профили интенсивности были измерены поперек оси трубки в областях, отмеченных стрелками 1 и 2.

На рис. 26,*b* показан график, вычисленный по программе FIMTIM, на который наложены точки нормализованной экспериментальной кривой. В области 1 наилучшее совпадение расчетной и экспериментальной кривых получено при наименьшем значении суммы квадратов отклонений $\chi^2 = 1.40 \times 10^{-4}$. При этом поперечный (D) и продольный (D_0) диаметры равны: $D^{(1)} = 4.77$ мкм и $D_0^{(1)} = 3.99$ мкм. Трубочатая пора имеет эллиптическое сечение.

Точность определения диаметров демонстрирует карта распределения функции $\chi^2(D, D_0)$ на плоскости ее аргументов вблизи минимума. На рис. 26,*c* черный цвет соответствует $\chi_{min}^2 = 1.39 \times 10^{-4}$, и белый цвет соответствует $\chi_{max}^2 = 1.49 \times 10^{-4}$ (или выше). Малые отклонения χ^2 локализованы в области конечного размера. С высокой точностью определяется площадь сечения поры $\sigma_1 = \pi(D \times D_0)/4 = 15 \mu\text{m}^2$, а каждый из диаметров определяется с меньшей точностью.

Далее в результате моделирования мы узнаем, что в области 2 происходит изменение поперечного сечения. Здесь наилучшее соответствие ($\chi^2 = 1.54 \times 10^{-4}$) между симуляцией и экспериментом получено для параметров $D^{(2)} = 2.62$ мкм и $D_0^{(2)} = 2.82 \mu\text{m}$. Площадь сечения равна $\sigma_2 = 6 \mu\text{m}^2$.

2.6.3 2D-моделирование микрокапсулы

Капсула аппроксимируется цилиндром с круглым поперечным сечением, как у трубки. Однако, в отличие от трубки, она имеет конечную длину и оканчивается полусферами с двух сторон цилиндра. Изображения капсульных пор, выбранные для моделирования, показаны на рис. 27.

Картина на верхней панели получена в розовом пучке с полушириной спектра $\Delta E = 11$ кэВ. Нижняя панель демонстрирует те же микропоры, освещенные пучком с узким спектром, который сформирован многослойным монохроматором. Монохроматическое излучение позволяет получить более четкий контраст. Однако время экспозиции отличается весьма сильно и составляет 25×10^{-3} сек. и 190 сек. соответственно для розового и монохроматического излучений.

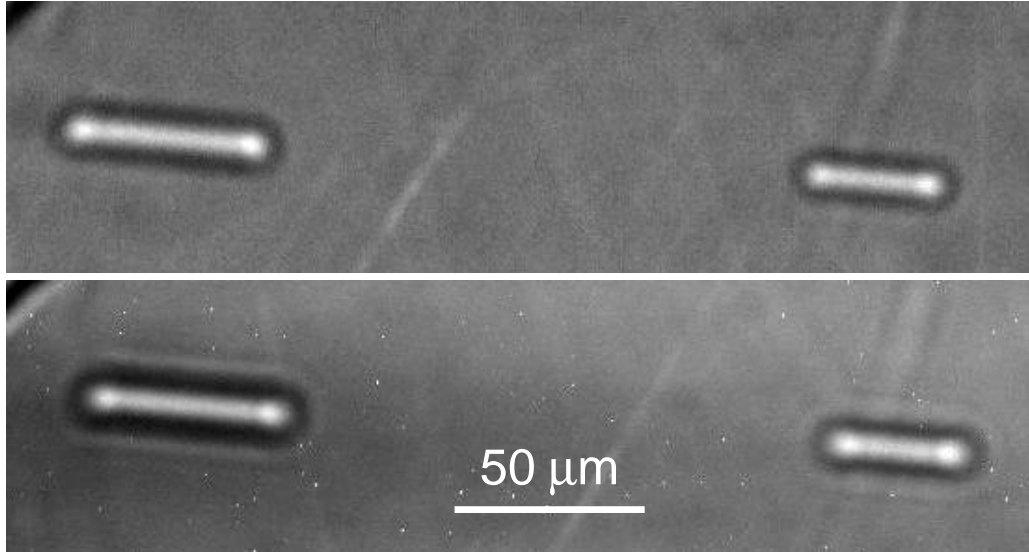


Рис. 27. Фазово-контрастные изображения микропор в виде капсул. Энергия фотонов $E = 16$ кэВ. Верхняя панель: розовый пучок СИ; $\Delta E = 11$ кэВ. Нижняя панель: монохроматическое излучение; $\Delta E/E = 0.4$ %. Расстояние от образца до детектора соответствует области дальнего поля: $r_d = 35$ см.

Задача моделирования состояла в определении параметров капсульных пор путем сравнения экспериментальных изображений с теоретическими. Ниже приведен алгоритм двумерного расчета.

На большом расстоянии $r_s = z_0$ от источника СИ излучение можно разложить на монохроматические гармоники и аппроксимировать их выражением

$$E(x, y, z_0) = \exp(iKz_0)P_2(x, y, z_0). \quad (11)$$

где $K = \omega/c = 2\pi/\lambda$, ω —частота излучения, c —скорость света, λ —длина волны, и

$$P_2(x, y, z) = P(x, z)P(y, z), \quad P(x, z) = \frac{1}{(i\lambda z)^{1/2}} \exp\left(i\pi \frac{x^2}{\lambda z}\right). \quad (12)$$

Здесь используется декартова система координат с осью z вдоль направления пучка СИ (оптическая ось) и осями x, y вдоль горизонтальной и вертикальной осей в плоскости, перпендикулярной пучку. Формулы (11) и (12) соответствуют параксиальному приближению, которое справедливо для рентгеновского излучения с хорошей точностью. Воздействие на когерентную волну со стороны объекта описывается трансмиссионной функцией. Для объектов малых размеров фазовый фактор $\exp(iKz)$ может быть опущен, поскольку он не влияет на интенсивность, измеряемую детектором.

Рассмотрим микропору в кристалле. Последний не влияет на распределение интенсивности; он лишь однородно уменьшает интенсивность вследствие

поглощения. Обозначим максимальную толщину поры вдоль пучка t_0 . Влияние пустоты на электромагнитное поле излучения состоит в увеличении фазы и амплитуды волны по сравнению с остальной частью кристалла, в которой пустота отсутствует. Это может быть учтено выражением:

$$T(x, y) = \exp(iK[\delta - i\beta]t(x, y)) \quad (13)$$

где δ и β – это параметры, характеризующие преломление и поглощение так, что комплексный коэффициент преломления материала равен $n = 1 - \delta + i\beta$, и $t(x, y)$ – это переменная толщина поры вдоль оптической оси. Выражение (13) удобно использовать при расчете, потому что $T(x, y)$ равно единице вне поры. После расчета необходимо умножить интенсивность на коэффициент $\exp(-\mu_0 t_0)$, чтобы учесть поглощение внутри пластины. Здесь $\mu_0 = 2K\beta$ – линейный коэффициент поглощения.

За образцом на расстоянии $r_d = z_1$ волновое поле может быть получено путем расчета интеграла Кирхгофа и вычисления свертки:

$$E(x, y, z_t) = \int dx_1 dy_1 P_2(x - x_1, y - y_1, z_1) T(x_1, y_1) P_2(x_1, y_1, z_0) \quad (14)$$

где $z_t = z_0 + z_1$. Преобразуем интеграл к виду, более удобному для расчета:

$$E(x, y, z_t) = P_2(x, y, z_t) \int dx_1 dy_1 P_2(x_r - x_1, y_r - y_1, z_r) T(x_1, y_1), \quad (15)$$

где $x_r = xz_0/z_t$, $y_r = yz_0/z_t$, $z_r = z_1z_0/z_t$.

В дальнейшем удобно рассмотреть относительное волновое поле

$$A(x, y, z_t) = \frac{E(x, y, z_t)}{P_2(x, y, z_t)} \quad (16)$$

и преобразовать выражение к интегралу с конечными пределами:

$$A(x, y, z_t) = 1 + \int dx_1 dy_1 P_2(x_r - x_1, y_r - y_1, z_r) [T(x_1, y_1) - 1]. \quad (17)$$

В итоге, мы получим выражение для фазово-контрастного изображения, которое регистрирует детектор:

$$C(x, y) = |A(x, y, z_t)|^2 \exp(-\mu_0 t_0) \quad (18)$$

Для изображения микропоры в форме капсулы с цилиндрическим сечением используем формулу:

$$t(x, y) = t_0 \left(d - \frac{y^2}{R} \right)^{1/2} \quad (19)$$

где $t_0 = 2R$, и

$$\begin{aligned} d &= 1 & -a < x < a \\ d &= 1 - (x + a)^2/R^2 & x < -a \\ d &= 1 - (x - a)^2/R^2 & x > a \end{aligned} \quad (20)$$

В этом случае у нас есть только два параметра: радиус кривизны R и длина области постоянного сечения $2a$. Расчет свертки (17) был выполнен с помощью двух преобразований Фурье. Сначала вычислялся фурье-образ трансмиссионной функции $[T - 1]$. Результат умножался на фурье-образ пропагатора Френеля $P_2(x, y, z_r)$. Обратное преобразование Фурье от произведения фурье-образов двух функций давало искомый ответ. Процедура FFT (быстрое преобразование Фурье) проводилась на сетке из 2048×1024 точек с шагом 0.05 мкм.

Моделирование с использованием вышеприведенного алгоритма выполнено для следующих условий эксперимента: энергия фотонов $E = 16$ кэВ,

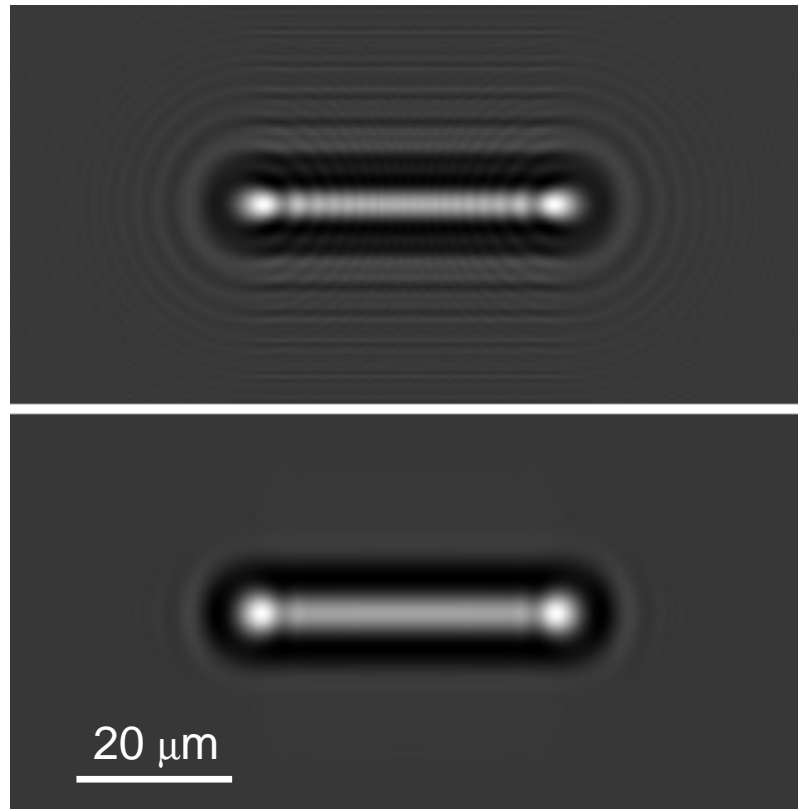


Рис. 28. Фазово-контрастное изображение, рассчитанное для микропоры в форме капсулы. Верхняя панель: точечный источник СИ и идеальное разрешение детектора. Черный цвет соответствует 0.26, белый – 3.47. Нижняя панель: сглаженное расчетное изображение после вычисления свертки с гауссианом, имеющим полуширину 2 мкм по вертикали и 4 мкм по горизонтали.

$z_0 = 34$ м, $z_1 = 35$ см, $a = 20$ мкм. Параметру R присваивались различные значения с целью подогнать расчетные изображения к экспериментальному. Максимально близкое совпадение с экспериментом было получено для значения $R = 3.5$ мкм. Изображение, рассчитанное для точечного источника, показано на верхней панели рис. 28. Наличие интерференционных осцилляций обусловлено дифракционной природой рассеяния. Однако на экспериментальных изображениях эти осцилляции не видны (рис. 27).

Примем во внимание, что реальный источник СИ имел размеры $60(V) \times 160(H)$ мкм². Учет полуширины источника в поперечном направлении выражается в сдвиге картины на детекторе. Для улучшения совпадения расчетное изображение было сглажено на 0.6 мкм по вертикали и на 1.6 мкм по горизонтали. Это довольно малые значения. Более важный фактор, отрицательно влияющий на качество совпадения, — это ограниченное разрешение детектора. Хотя оптимизированный размер пикселя детектора меньше микрометра (~ 0.5 мкм), реальное пространственное разрешение хуже.

Далее, на нижней панели рис. 28 показан результат свертки с гауссианом, имеющим полуширину 2 мкм по вертикали и 4 мкм по горизонтали. Результирующее изображение выглядит почти так же, как экспериментальное. Для того, чтобы получить изображение, записанное в розовом пучке СИ, необходимо рассчитать изображения для различных энергий и просуммировать их все в одно целое в соответствии с эффективным спектром пучка. Очевидно, что такая процедура приведет к существенному ослаблению контраста.

Что касается механизмов зарождения микропор в исследованных кристаллах, то следует обратить внимание на ту особенность, которой не было в образцах, описанных в литературе (см., например, [224]). А именно на факт существования пустот, разделяющих мезы. Известно, что пустоты внутри материала являются источниками вакансий, которые образуются на их свободных поверхностях. В то же время дефекты кристаллической решетки, возникшие в результате пластической деформации во время роста кристалла, играют роль стоков и мест коагуляции вакансий. В данной работе методом топографии были обнаружены границы субзерен и полосы скольжения дислокаций, расположенные в плоскости (0001), параллельной направлению роста $[11\bar{2}0]$.

Сравнение с литературными данными свидетельствует, что рост кристалла в направлениях $[11\bar{2}0]$ и $[1\bar{1}00]$ сопровождается образованием дефектов упаковки, малоугловых границ и полос скольжения из краевых дислокаций в плоскостях, параллельных направлению роста [224]. Поры могли образоваться в результате диффузии и коагуляции вакансий, источниками которых были свободные поверхности пустот. Высокая температура, поддерживаемая в процессе роста, облегчала диффузию вакансий вглубь кристалла. Грубая оценка показывает, что характерная скорость диффузии вакансий углерода составляет ~ 1 см час⁻¹ при температуре 2300 К, что намного превышает типичную скорость роста кристалла SiC. Следовательно, есть основания считать, что вакансии имели достаточно времени для коагуляции и формирования микропор вокруг структурных дефектов.

Определение параметров микропор необходимо для количественной оценки их вклада в дислокационные механизмы релаксации напряжений в растущем кристалле SiC. В рассмотренном нами случае использование монохроматора улучшило контраст изображений (при заметном увеличении времени экспозиции), но не дало ожидаемых преимуществ по сравнению с розовым пучком. Тем не менее изображения, рассчитанные с использованием алгоритма двумерного моделирования, хорошо согласуются с экспериментальными данными.

2.7 Выводы

Метод фазово-контрастного изображения с использованием синхротронного излучения (СИ) позволяет получать изображения микропор с размерами сечения от долей микрометра до нескольких микрометров в объеме монокристаллов (например, карбида кремния).

Изображения микропор регистрируют в условиях дальнего поля, где изображения имеют увеличенный размер. Проблема определения реальных размеров сечений микропор требует решения обратной задачи. Когда пучок СИ не ограничен, а изображения искажены суммированием по широкому пику спектра излучения, компьютерное моделирование является единственным способом решения обратной задачи.

Разработан метод компьютерной симуляции, который позволяет определять размеры эллиптического сечения микротрубок из экспериментальных изображений. Метод можно применять как в монохроматическом излучении, так и в пучке СИ с относительно большой шириной спектра. Метод позволяет определять ориентацию сечения микротрубки в объеме кристалла для конкретных случаев.

Представлено двумерное моделирование фазово-контрастных изображений, полученных в монохроматическом СИ. На примере микропор в кристалле SiC высокого структурного совершенства показано, что учет конечного размера источника СИ и ограниченного разрешения детектора позволяет получать хорошее совпадение расчетных изображений с экспериментальными и определять размеры микропор в форме капсул.

3. Экспериментальные исследования микротрубок в кристаллах SiC методом фазово-контрастного изображения

Аннотация.

Показано, как экспериментальные исследования, которые сопровождаются компьютерным моделированием фазово-контрастных изображений, позволяют обнаружить новые свойства и неизвестные ранее морфологические особенности дислокационных микротрубок в монокристаллах SiC. Описаны и объяснены новые эффекты изменения формы и размеров сечений, возникающие при распространении микротрубок в растущих кристаллах. Предложен механизм формирования морфологических особенностей.

Приведены экспериментальные изображения, демонстрирующие реакции между дислокациями, расположенными вдоль осей микротрубок. Установлены и описаны типы реакций, которые происходят когда трубки вступают в контакт, касаясь друг друга своими поверхностями.

Изучен неизвестный ранее эффект коррелированного уменьшения диаметров микротрубок, удаленных друг от друга. Эффект рассмотрен как косвенное свидетельство бесконтактного взаимодействия между дислокациями. Разработана модель бесконтактной реакции. Обсуждается, какова роль и польза контактных и бесконтактных реакций в процессе эволюции микротрубок в растущих монокристаллах SiC.

3.1 Морфологические особенности микротрубок

Во второй главе показан пример компьютерного моделирования фазово-контрастного изображения микротрубки (МТ) в кристалле SiC, измеренного детектором при фиксированном значении расстояния от образца r_d (см. рис. 16). Вообще говоря, чтобы исключить влияние условий эксперимента, необходимо выбирать несколько расстояний r_d и делать подгонку по каждому расстоянию отдельно. Если диаметры сечения МТ найдены правильно, они не должны зависеть от расстояния. В таком подходе независимость диаметров от расстояния является критерием как правильности постановки эксперимента, так и процедуры подгонки.

На рис. 29 показаны диаметры сечения МТ, определенные подгонкой данных, полученных на разных расстояниях от образца r_d . Профили интенсивности измерены для четырех сечений, расположенных близко друг от друга вдоль оси трубки. Ось трубки установлена перпендикулярно

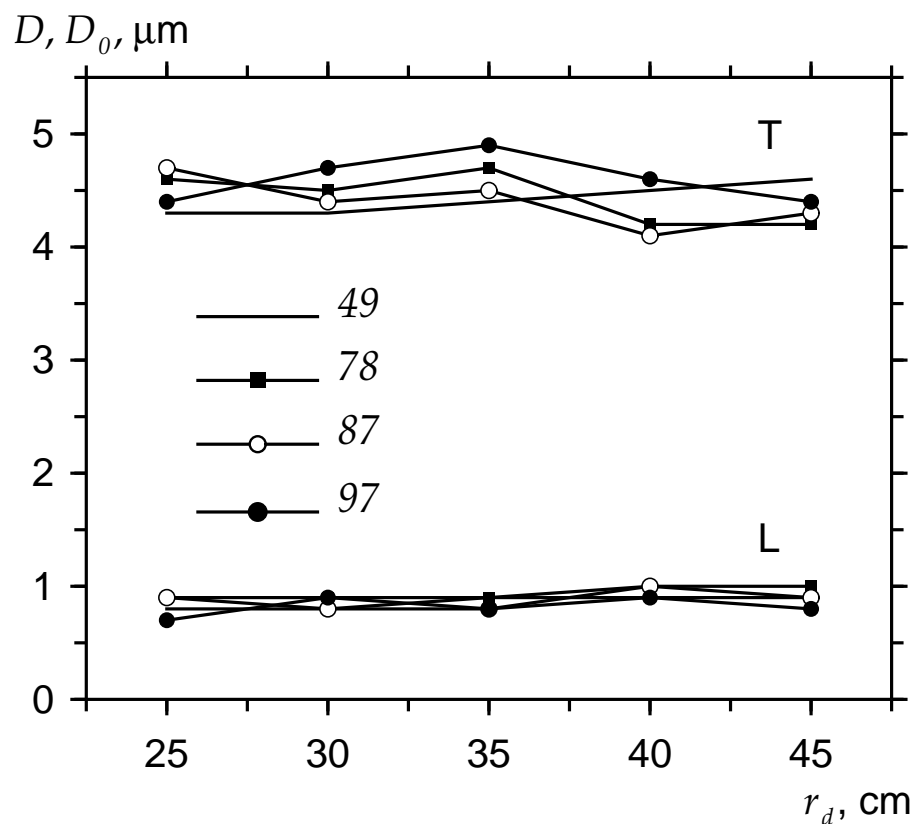


Рис. 29. Параметры сечения микротрубки, определенные из изображений на разных расстояниях от образца r_d для четырех сечений вдоль оси микротрубки. Положение сечений в микронах указано цифрами на поле графика. Буквой Т отмечены поперечные диаметры D , а буквой L — продольные диаметры D_0 .

направлению пучка синхротронного излучения (СИ). Хотя данные на графике и не укладываются в одну линию, видно, что полученные параметры слабо изменяются как с расстоянием r_d , так и вдоль оси МТ. Однако поперечный и продольный диаметры различаются весьма заметно. Продольный диаметр D_0 равен всего 0.8–1 мкм, в то время как поперечный диаметр D равен 4.5–5 мкм. Этот экспериментальный результат оказался довольно неожиданным.

Ранее в рамках теории упругости было предсказано существование эллиптической формы сечения полых ядер супердислокаций. Анализируя равновесные модели, авторы работы [236] установили, что, круглые трубки вокруг винтовых дислокаций, предсказанные Франком [15], устойчивы в изотропном материале. Трубки вокруг краевых дислокаций также устойчивы, но они не являются круглыми даже в изотропном материале. Полые ядра краевых супердислокаций имеют эллиптическую форму, обусловленную симметрией упругого поля этих дислокаций. Хирш [237] рассчитал упругие поля как для краевых, так и для винтовых дислокаций с полым ядром эллиптической формы.

В этой связи уместно указать на результаты наблюдений, выполненные методами поляризационно-оптической микроскопии [238, 239] и ПЭМ [240], которые свидетельствуют о том, что супердислокации внутри трубок не обязательно являются винтовыми. Степень, не исчезающая в процессе роста, так же, как и полое ядро могут сформироваться на супердислокациях смешанного или краевого типа [241].

В данной работе эллиптическая форма сечения МТ наблюдалась во многих кристаллах SiC. Рассмотрим два примера, которые демонстрируют неустойчивость формы сечения трубок. В первом примере МТ расположена параллельно оси роста кристалла, а во втором МТ отклоняется от оси роста на довольно большой угол. На рис. 30 показано фазово-контрастное изображение МТ первого типа, расположенной перпендикулярно пучку СИ. Изображение получено в дальнем поле, и диаметр первой зоны Френеля $2r_1$ больше, чем диаметр МТ: $2r_1 = 2(\lambda r_d)^{1/2} = 11$ мкм, где $\lambda = 0.775$ Å и $r_d = 40$ см. Изображение имеет вид универсального профиля усредненной интенсивности: центральный пик и сильно ослабленные боковые осцилляции, состоящие из минимума и максимума. Расстояние между осцилляциями

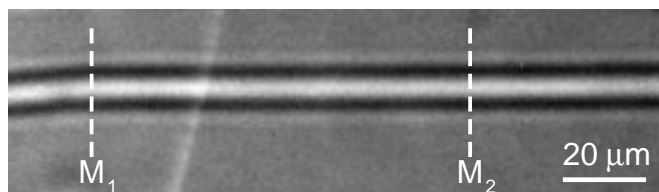


Рис. 30. Фазово-контрастное изображение микротрубки в кристалле SiC. Розовый пучок СИ. $E = 16$ кэВ. $\Delta E/E = 11$ кэВ. Расстояние образец–детектор $r_d = 40$ см. Моделирование профилей интенсивности выполнено для уровней M_1 и M_2 .

выглядит неизменным вдоль оси трубки. Может показаться, что размер сечения равен размеру центральной светлой полосы между двумя темными полосами. Однако этот размер равен диаметру первой зоны Френеля. Истинные диаметры микротрубки в дальнем поле проявляются только через контраст, и для их определения необходимо выполнить компьютерное моделирование изображения. Экспериментальные профили распределения относительной интенсивности были измерены на двух уровнях M_1 и M_2 вдоль оси МТ. Поскольку изображение в дальнем поле целиком определяется первой зоной Френеля, моделирование формы и размеров сечения возможно только для достаточно медленных изменений этих параметров. Повторимся, отметив еще раз, что сколь бы резкими ни были скачки диаметров, их невозможно зафиксировать путем расчета в одномерном приближении, когда расстояние между уровнями меньше, чем $2r_1$. Поэтому расстояние между M_1 и M_2 было выбрано равным 90 мкм, что заведомо больше, чем $2r_1 = 11$ мкм.

Диаметры сечения D и D_0 были определены с помощью программы

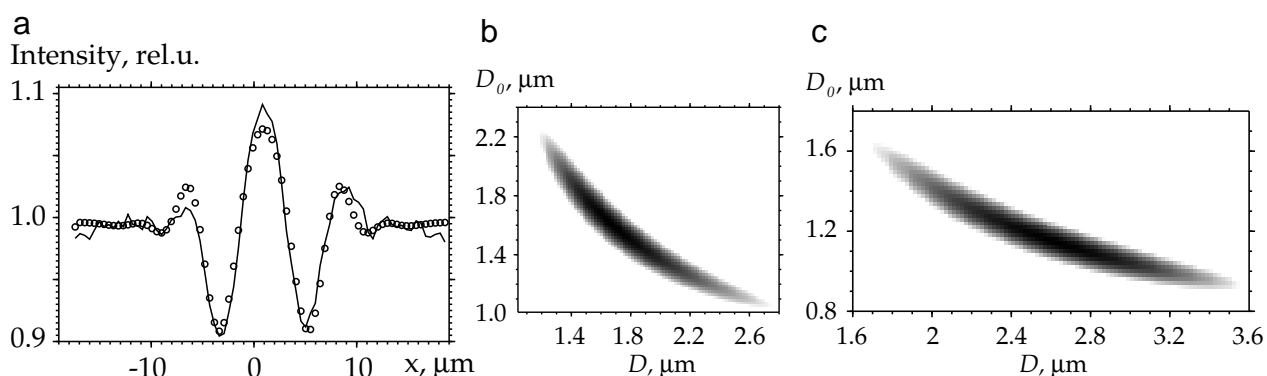


Рис. 31. Результаты моделирования изображения на рис. 30. (a) – Экспериментальный (символы) и расчетный (сплошная линия) профили относительной интенсивности на уровне M_1 . (b) Карта распределения минимума суммы квадратов отклонений $\chi^2(D, D_0) - \chi_{min}^2$ в зависимости от параметров D и D_0 , построенная для уровня M_1 . (c) Карта $\chi^2(D, D_0) - \chi_{min}^2$ соответствует уровню M_2 .

FIMTIM путем сравнения расчетных профилей интенсивности с экспериментальными. Результаты расчетов для уровня M_1 показаны на рис. 31. Экспериментальная кривая, изображенная символами на рис. 31a, совпадает с расчетной кривой, нарисованной сплошной линией, при $\chi_{min}^2 = 7.74 \times 10^{-5}$. При этом значения диаметров равны $D = 1.76$ мкм, $D_0 = 1.52$ мкм. На рис. 31b приведена карта распределения $\chi^2(D, D_0) - \chi_{min}^2$ вблизи точки минимума. На этой карте черный и белый цвета соответствуют $\chi_{min}^2 = 7.82 \times 10^{-5}$ и $\chi_{max}^2 = 9.29 \times 10^{-5}$. Все значения $\chi^2 > \chi_{max}^2$ заменялись на χ_{max}^2 . Область малых величин χ^2 имеет вид почти симметричной гиперболы с минимальным размером вдоль направления $D = D_0$ и максимальным — в перпендикулярном направлении. Отсутствие локализации в области минимума отражает вышеописанную особенность изображений микротрубок в дальнем поле: изменение размеров сечения микротрубки не приводит к изменению размеров ее изображения, а влияет только на контраст, который масштабируется площадью сечения. Перемножая D и D_0 , получаем площадь сечения σ_1 на уровне M_1 : $\sigma_1 = \pi D D_0 = 8.4$ мкм². Искажение симметрии карты вдоль осей D и D_0 показывает, что сечение имеет слегка овальную форму: $D/D_0 = 1.2$.

Интересно, что для уровня M_2 программа определила совсем другие значения диаметров: $D = 2.54$ мкм и $D_0 = 1.18$ мкм. Соответствующую этому уровню область минимума можно видеть на рис. 31c. Теперь гиперболическое распределение значений χ^2 вытянуто вдоль оси поперечного диаметра D заметно сильнее, что свидетельствует об увеличении эллиптичности сечения: $D/D_0 = 2.2$. Перемножая новые значения диаметров, получаем площадь сечения σ_2 на уровне M_2 : $\sigma_2 = 9.4$ мкм².

Перейдем к рассмотрению МТ второго типа, которая отклоняется от оси роста на довольно большой угол. Подобные отклонения наблюдались и для некоторых других трубок. Изображение одной такой МТ показано на рис. 32. Она является частью конфигурации из трех пор. Направление, параллельное оси роста кристалла, обозначено жирной стрелкой, обращенной влево. В отличие от двух соседних пор рассматриваемая трубка имеет цилиндрическую форму. Вообще говоря, для наклонных трубок параметры их сечений пучком СИ не равны истинным значениям диаметров.

Допустим, что микротрубка на рис. 32 имеет круглое сечение с диаметром

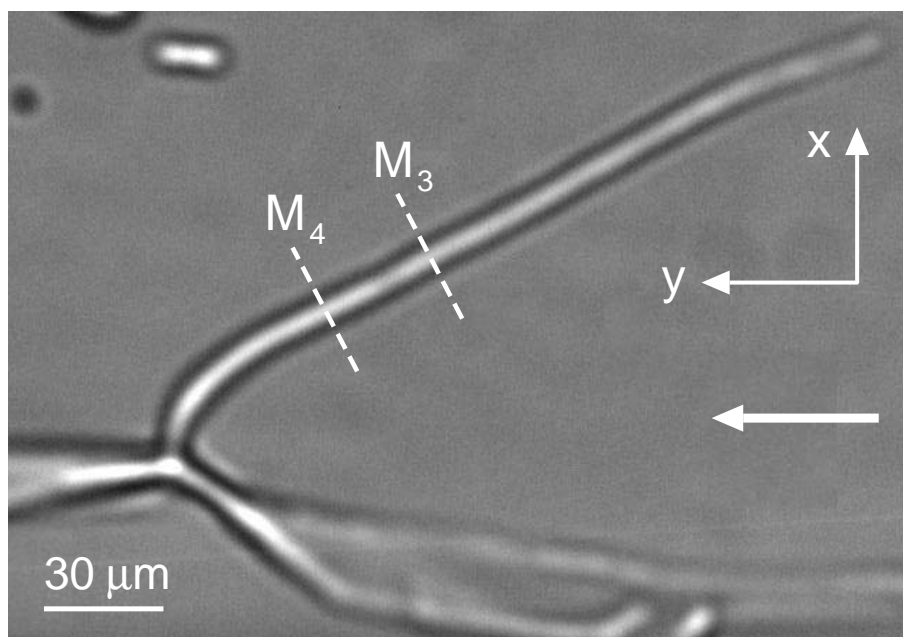


Рис. 32. Изображение наклонной микротрубки. Моделирование профилей интенсивности выполнено для уровней M_3 и M_4 . Направление роста кристалла указано стрелкой.

$2r_0$. Пусть ось изображения — это ось x . Считая, что ось МТ находится в плоскости (x, y) , перпендикулярной направлению пучка z , обозначим острый угол между осью МТ и осью x через $\psi < 90^\circ$. Эффективные диаметры D и D_0 , которые вычисляет программа FIMTIM по профилям интенсивности, измеренным перпендикулярно оси роста кристалла, связаны с истинным диаметром $2r_0$ соотношениями: $D = 2r_0 / \sin \psi$ и $D_0 = 2r_0$, $D > D_0$.

В то же время, можно измерить профиль интенсивности поперек оси МТ, если повернуть изображение на рис. 32 против часовой стрелки на угол ψ . В этом случае программа FIMTIM вычислит правильные значения диаметров. Однако следует иметь в виду, что поворот изображения скажется на точности их определения. Программа учитывает размер источника, исходя из минимальной (вертикальной) проекции фокуса, а наличие угла поворота ψ увеличивает этот размер на неопределимую величину.

Профили интенсивности были измерены поперек наклонной микротрубки путем поворота изображения при помощи программы ImageJ на двух уровнях: M_3 и M_4 . Расстояние между уровнями равно 29 мкм. По данным моделирования на уровне M_3 , наклонная МТ имеет практически круглое сечение: $D = 1.96$ мкм и $D_0 = 1.84$ мкм; $D/D_0 = 1.06$. Однако на уровне M_4 сечение становится эллиптическим: $D = 5.32$ мкм и $D_0 = 1.32$ мкм;

Таблица 5. Диаметры D , D_0 и площадь сечения σ микротрубок, определенные по программе FIMTGM на уровнях M_i ($i = 1 - 4$) с точностью χ_{min}^2

M_i	$D, \mu\text{m}$	$D_0, \mu\text{m}$	$\sigma, \mu\text{m}^2$	χ_{min}^2
M_1	1.76	1.52	8.4	7.74×10^{-5}
M_2	2.54	1.18	9.4	7.30×10^{-5}
M_3	1.96	1.84	11.3	8.99×10^{-5}
M_4	5.32	1.32	22.0	4.50×10^{-5}

$D/D_0 = 4.03$. Площади сечения на уровнях M_3 и M_4 равны соответственно $\sigma_3 = 11.3 \text{ мкм}^2$ и $\sigma_4 = 22.0 \text{ мкм}^2$. Параметры, полученные в результате моделирования изображений двух вышеописанных трубок, перечислены в таблице 5.

Изучение морфологии других МТ в кристаллах 4H-SiC и 6H-SiC позволяет сделать вывод, что описанные свойства характерны для многих трубок. Во-первых, размеры сечений изменяются вдоль осей МТ. Во-вторых, у многих МТ наблюдаются отклонения от цилиндрической формы, характерной для полости вокруг ядра винтовой супердислокации. В-третьих, цилиндрическая форма некоторых МТ является неустойчивой и может переходить в эллиптическую. В-четвертых, на МТ наблюдаются локальные искривления. Наконец, они могут внезапно обрываться в кристалле. Эти особенности нельзя объяснить при помощи уже известных моделей образования дислокационных микротрубок [23, 25, 29, 30].

Обсудим причины отклонения формы МТ от равновесной цилиндрической формы, предсказанной Франком [15]. Один из возможных сценариев формирования МТ с переменным сечением отводит ведущую роль коагуляции вакансий и включает в себя следующие основные стадии:

- гетерогенное образование дислокаций, вытянутых вдоль оси c и достигающих фронта роста кристалла;
- трубочная диффузия вакансий от поверхности в глубь кристалла по ядрам этих дислокаций;
- коагуляция этих вакансий вокруг дислокаций;
- формирование вокруг дислокаций сплошной полости (трубки) и выравнивание ее поверхности путем поверхностной диффузии вакансий.

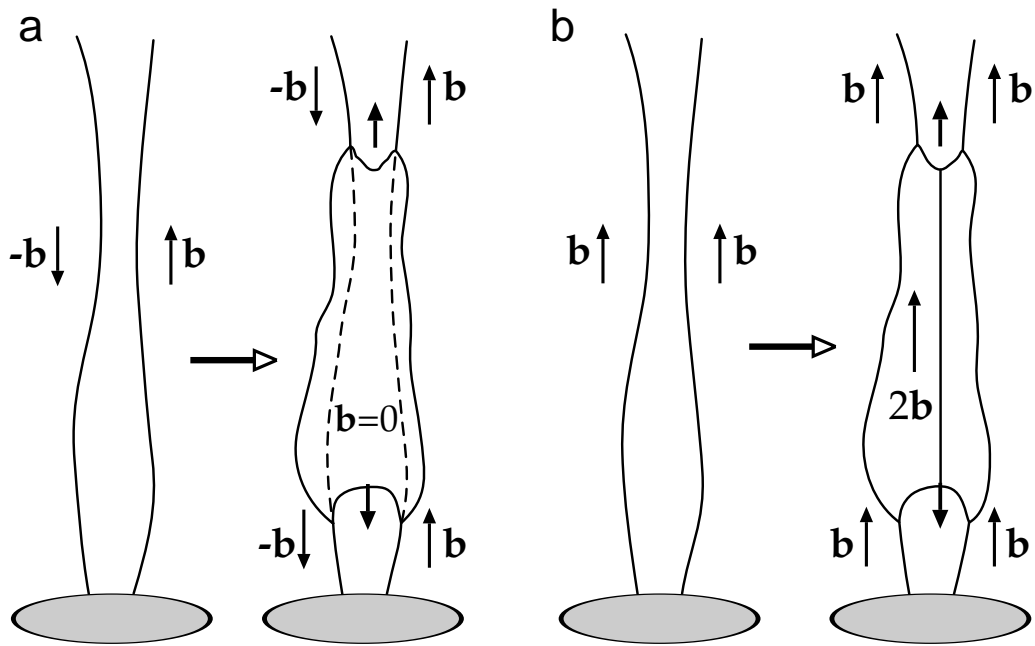


Рис. 33. Схема образования сплющенной микротрубки: (а) на дислокационном диполе и (b) на паре дислокаций одного знака. Черные жирные стрелки указывают направление разрастания микротрубки вдоль дислокационных линий за счет поглощения и поверхностной диффузии вакансий.

Диффузия, коагуляция и последующие поглощение–испускание микротрубкой вакансий являются сильно неравновесными процессами, так что формирование МТ в значительной мере определяется кинетикой их протекания, а не термодинамикой Франка.

Рассмотрим теперь, как можно с помощью такой схемы объяснить формирование микротрубок „сплющенного“ сечения. Возьмем не одну, как раньше, а несколько дислокаций, зародившихся на одном концентраторе напряжений (крупной поверхностной ступеньке, поре, инородном включении, включении другого политипа и т. п.). В простейшем случае это может быть дислокационный диполь (рис. 33,а) или пара дислокаций одного знака (рис. 33,б). Если эти дислокации располагаются не слишком далеко друг от друга, то в процессе коагуляции вакансий образующаяся пора может захватить обе дислокации сразу и приобрести при этом сечение, вытянутое в направлении от одной дислокации к другой. Расхождение или сближение дислокаций в процессе роста кристалла будет вызывать соответствующие изменения сечения такой сплющенной МТ, а отклонения дислокаций в направлениях под углом к соединяющей их воображаемой линии или, тем

более, закручивание дислокаций вокруг общей оси будут восприниматься как закручивание сплюсненной МТ.

Оценим условия, при которых формирование таких сплюсненных микротрубок будет энергетически выгодным. В случае дислокационного диполя охват микротрубкой обеих дислокаций имеет то очевидное преимущество, что при этом происходит аннигиляция дислокаций внутри микротрубки, и дислокационный диполь превращается в две дислокационные полупетли — „верхнюю“ и „нижнюю“ (в этих полупетлях дислокации с векторами Бюргерса \mathbf{b} и $-\mathbf{b}$ соединяются друг с другом ступеньками соответственно на „верхней“ и „нижней“ поверхностях МТ). Отсюда — выигрыш в упругой энергии дислокаций и в энергии их ядер. В то же время увеличение объема МТ, необходимое для охвата всего диполя, ведет к увеличению энергии свободной поверхности МТ, то есть к некоторому проигрышу в общей энергии системы. Баланс выигрыша и проигрыша в общей энергии определяет критический размер МТ, который она не может превысить. В исходном состоянии (до появления МТ) общую погонную энергию дислокационного диполя можно оценить величиной

$$W_1 = \frac{Gb^2}{2\pi} \left[\ln \frac{d}{r_c} + 2Z \right], \quad (21)$$

где G — модуль сдвига, b — величина вектора Бюргерса дислокации, d — плечо диполя, r_c — радиус обрезания упругого поля дислокации на ее ядре, $Z \sim 1$ — безразмерный параметр, характеризующий энергию ядра дислокации. После образования МТ и аннигиляции диполя энергию системы (на единицу длины исчезнувших дислокаций) можно оценить как $W_2 = \gamma L$, где L — средний периметр сечения МТ. Образование такой МТ энергетически выгодно, если изменение погонной энергии системы

$$\Delta W = W_2 - W_1 = \gamma L - \frac{Gb^2}{2\pi} \left[\ln \frac{d}{r_c} + 2Z \right] < 0, \quad (22)$$

откуда сразу получаем оценку для критического периметра L_c , такого что

$$L < L_c = \frac{Gb^2}{2\pi\gamma} \left[\ln \frac{d}{r_c} + 2Z \right]. \quad (23)$$

Зависимость изменения энергии ΔW от плеча диполя d показана на рис. 34. Значения параметров взяты для 4Н-SiC: $c = 1$ нм, $G = 165$ ГПа, $\gamma = 0.2$ Дж/м² [21]. Кривые построены для трех значений вектора Бюргерса:

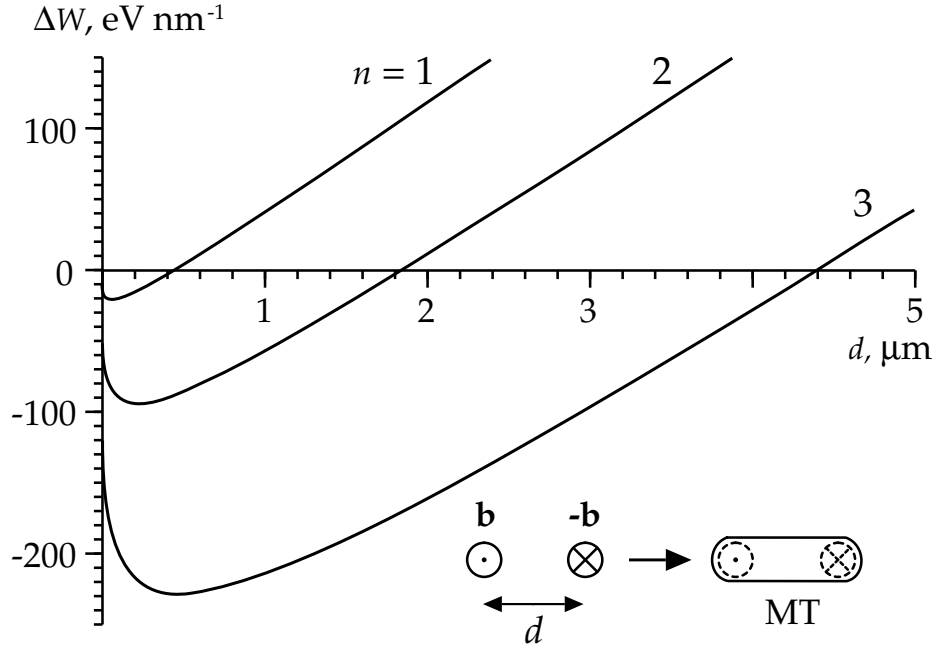


Рис. 34. Зависимость изменения энергии ΔW от плеча дислокационного диполя d для $b = nc$ ($n = 1, 2$ и 3) при $c = 1$ нм, $G = 165$ ГПа, $\gamma = 0.2$ Дж/м² и $\eta = 2.5$. На вставке показана схема аннигиляции диполя при образовании вокруг него сплющенной микротрубки.

$b = nc$ при $n = 1, 2$ и 3 , причем в качестве параметра обрезания брали $r_c = b$. В расчетах периметр сечения МТ L принимался пропорциональным плечу диполя d : $L = \eta d$ при $\eta = 2.5$ (значение $\eta \sim 2$ соответствует плоской щели, а $\eta = \pi$ – окружности). Как видно из рис. 34, наибольший выигрыш в энергии достигается при $d \sim 0.07, 0.21$ и 0.47 мкм соответственно для $n = 1, 2$ и 3 . В то же время образование МТ остается энергетически выгодным при значительно больших значениях d , при $d < d_c = L_c/2.5 \sim 0.40, 1.82$ и 4.40 мкм соответственно для $n = 1, 2$ и 3 . Такие размеры сечения сплющенных МТ часто наблюдаются в эксперименте.

В случае образования сплющенной МТ вокруг пары дислокаций одного знака имеем $W_1 = Gb^2/(2\pi) [\ln \{R^2/(dr_c)\} + 2Z]$ и

$$W_2 \approx \gamma L + \frac{2Gb^2}{\pi} \ln \frac{2R}{d}, \quad (24)$$

что дает изменение энергии

$$\Delta W = W_2 - W_1 = \gamma L + \frac{Gb^2}{2\pi} \left[\ln \frac{16R^2 r_c}{d^3} - 2Z \right] \quad (25)$$

Здесь R – параметр обрезания далекодействующего упругого поля спаренной дислокации, в качестве которого можно принять половину

расстояния между дислокациями противоположного знака в образце. В численных расчетах принималось $R = 10$ мкм, что соответствует плотности дислокаций $\sim 10^6$ см $^{-2}$, характерной для границ включений паразитных политипов.

Зависимость изменения энергии ΔW от расстояния между дислокациями d показана на рис. 35 для тех же значений параметров, что и для кривых на рис. 34. Кривые на рис. 35 построены для трех значений вектора Бюргерса: $b = nc$ при $n = 1, 3$ и 5 . Как видно из рис. 35, образование сплющенной МТ вокруг пары дислокаций с векторами Бюргерса, равными $1c$ и $3c$, энергетически невыгодно. Для того, чтобы такая МТ сформировалась, необходимо, чтобы величина векторов Бюргерса составляла бы не менее $5c$. При $b = 5c$ размер МТ может варьироваться примерно от 1.5 до 8.2 мкм, а наибольший выигрыш в энергии соответствует $d \approx 4$ мкм. Таким образом, в отличие от предыдущего случая дислокационного диполя, когда образование сплющенной МТ энергетически выгодно при любом значении вектора Бюргерса и при $d < d_c$, здесь мы имеем два критических условия

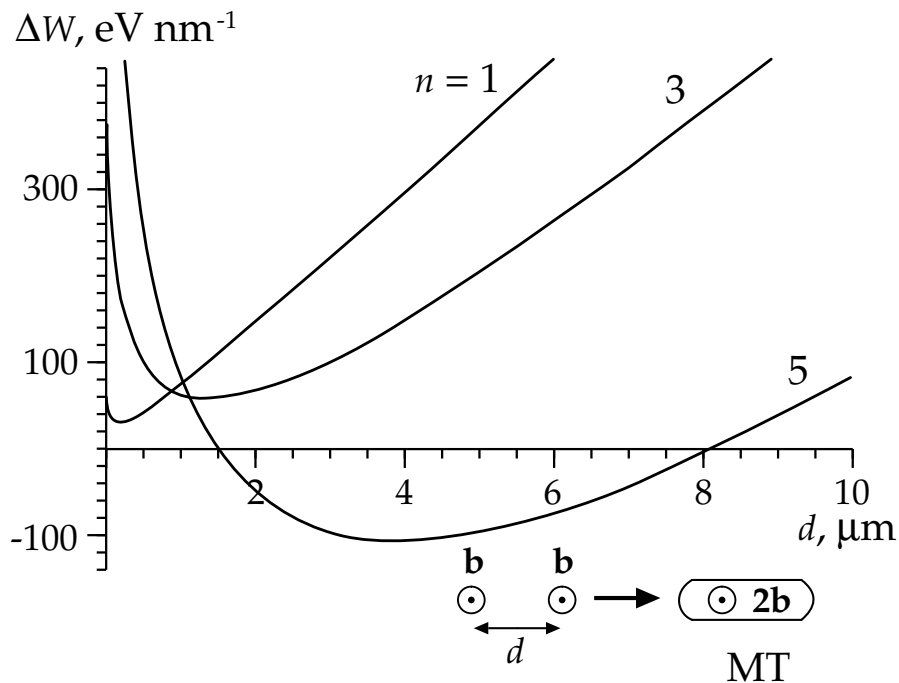


Рис. 35. Зависимость изменения энергии ΔW от расстояния между дислокациями d для $b = nc$ ($n = 1, 3$ и 5) при $c = 1$ нм, $G = 165$ ГПа, $\gamma = 0.2$ Дж/м 2 и $\eta = 2.5$. На вставке показана схема объединения дислокаций при образовании вокруг них сплющенной микротрубки.

формирования сплюсненной микротрубки: $b \geq b_c = 5c$ и $d_{c1} < d < d_{c2}$. При этом интервал допустимых значений d определяется величиной вектора Бюргерса: чем больше b , тем шире этот интервал.

Итак, образование сплюсненных МТ можно объяснить тем, что они охватывают сразу несколько (пучок) дислокаций, минимизируя при этом свою поверхность. При этом наибольший размер сечения МТ примерно соответствует расстоянию между крайними дислокациями в пучке. Если пучок дислокаций представляет собой самоэкранированный ансамбль дислокаций, от диполя до произвольного мультиполя, то движущая сила такого охвата всего пучка в целом – это возможность аннигиляции пучка внутри МТ, а основное ограничение – это размер пучка, который не должен превышать некоторый критический размер d_c . Если же пучок дислокаций состоит из дислокаций одного знака (или разных знаков, но количество дислокаций одного знака отличается от количества дислокаций другого знака), то движущая сила охвата пучка МТ – это снижение плотности упругой энергии вблизи пучка, а основные ограничения – это (1) превышение векторами Бюргерса (нескомпенсированных) дислокаций некоторого критического значения b_c и (2) попадание размера пучка (расстояния между нескомпенсированными дислокациями) в некоторый интервал между двумя критическими значениями d_{c1} и d_{c2} , который определяется величиной b . Сделанные численные оценки критических величин d_c , d_{c1} и d_{c2} хорошо согласуются с размерами сплюсненных МТ, наблюдавшихся в эксперименте.

В заключение, путем моделирования изображений большого количества микротрубок в кристаллах SiC были обнаружены новые морфологические особенности, не объясненные в рамках известных моделей: неустойчивость диаметра и цилиндрической формы микротрубок, локальные искривления и т. д. Исходя из того, что эти особенности обусловлены неравновесными процессами, был предложен альтернативный механизм формирования микротрубок в растущем кристалле SiC. Ведущую роль в нем играет коагуляция вакансий вокруг дислокаций, вытянутых вдоль оси c и достигающих фронта роста кристалла.

3.2 Взаимодействие между дислокационными микротрубками

3.2.1 Коррелированное уменьшение диаметров

Эволюция микротрубок (МТ) в процессе роста кристалла SiC во многом определяется упругим взаимодействием содержащихся в них дислокаций. Ранее было показано, что некоторые МТ могут остановиться в растущем слое так, что супердислокация с вектором Бюргерса $b = nc$ преобразуется в n элементарных винтовых дислокаций с вектором Бюргерса $\mathbf{b} = 1c$ [44]. И этот механизм обеспечивает зарастание трубок при использовании известных технологий производства тонких кристаллических слоев SiC [45–47]. В данной работе будет показано, что реакции расщепления или слияния дислокаций внутри трубок также сопровождаются уменьшением плотности МТ. Необходимым условием таких реакций одно время считался непосредственный контакт между свободными поверхностями трубок [242]. Однако с уменьшением плотности МТ контактные реакции становятся маловероятными.

Альтернативой контактным реакциям могут служить *бесконтактные реакции*. Гипотеза бесконтактного взаимодействия между винтовыми дислокациями со сплошным ядром была выдвинута в работе [51] при определении знаков векторов Бюргерса этих дислокаций. В данном разделе описан эффект коррелированного уменьшения размеров сечений двух МТ, расположенных на некотором расстоянии друг от друга. Согласно правилу Франка [15], радиус микротрубки r связан с ее вектором Бюргерса b соотношением $r \sim b^2$, и установленный эффект косвенно свидетельствует о том, что винтовые супердислокации внутри трубок могут упруго взаимодействовать без прямого контакта между трубками.

Эффект был обнаружен в образцах в форме пластин, вырезанных из кристаллов 4H-SiC параллельно оси роста [0001]. На рис. 36,*a* показана лауэ-грамма, согласно которой поверхность одной из пластин имеет ориентацию $(\bar{1}100)$. На фазово-контрастном изображении этого образца можно заметить изменение размеров сечений двух соседних трубок, обозначенных МТ1 и МТ2 (рис. 36,*b*). Вследствие этой особенности, а также из-за удаленности от других МТ, трубки были выбраны для более подробного изучения. На рис. 36,*b* ло-

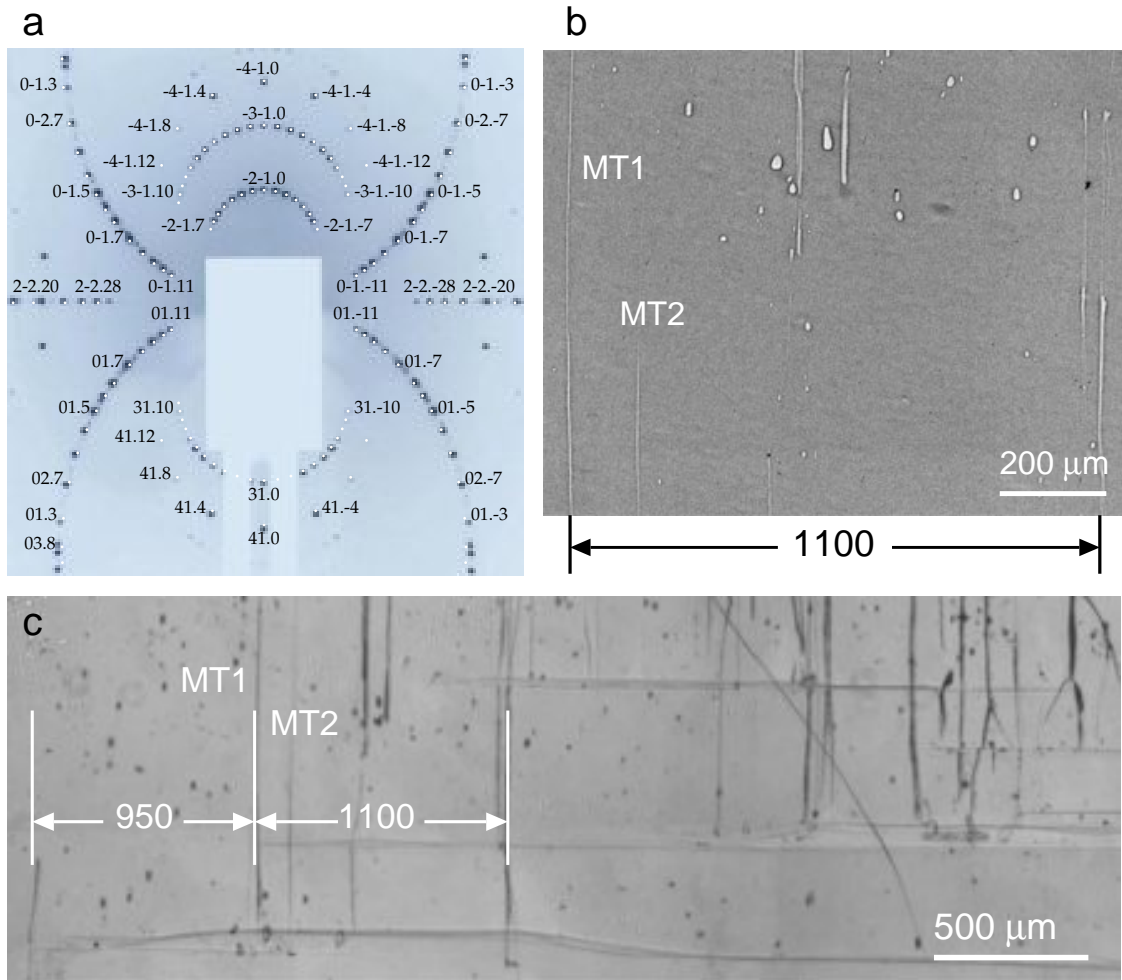


Рис. 36. (а) Лауэграмма пластины 4H-SiC ($\bar{1}100$). Направления $[\bar{1}100]$ и $[0001]$ расположены в горизонтальной плоскости соответственно параллельно и перпендикулярно направлению пучка СИ. Расстояние от образца до пленки 13 см. (б) Рентгеновское фазово-контрастное изображение, записанное на детектор на расстоянии $r_d = 7$ см. Две микротрубки переменного сечения, удаленные от других трубок, обозначены МТ1 и МТ2. (с) Оптическая микрофотография, на которой видны микротрубки (вертикальные линии) и включения инородных политипов (горизонтальные линии). Расстояния указаны в микронах. Пояснения в тексте.

кализация более крупной трубки МТ1 отнесена к месту, отстоящему на расстоянии 1100 мкм от группы других МТ. На оптической микрофотографии (рис. 36,с) эта группа находится справа от МТ1. А слева от нее виден дефект на поверхности пластины. Последний служил репером, от которого производился отсчет расстояний на рентгеновских топограммах.

Среди отражений, представленных на лауэграмме (рис. 36,а), были выбраны $\bar{2}\bar{1}\bar{2}$ и $01\bar{1}0$. Лауэтопограммы в белом пучке СИ, увеличенные через оптический микроскоп, представлены на рис. 37,а-б. Белая стрелка указывает на местоположение МТ1. Искажение решетки, вызванное винтовой супердислокацией, расположенной вдоль оси трубки, показано в виде

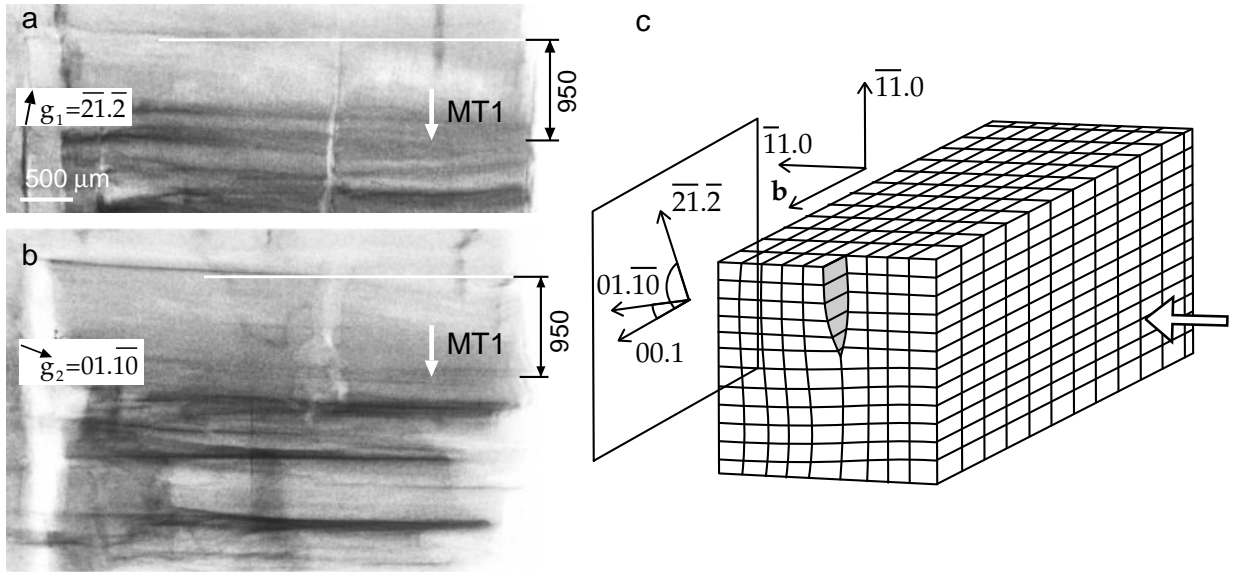


Рис. 37. Топограммы с изображениями микротрубки МТ1 и соседних с ней дислокаций и микротрубок, полученные в полихроматическом СИ на пленке Kodak SR-45. Положение репера отмечено белой линией. Пояснения в тексте. (a) Отражение $\mathbf{g}_1 = \overline{21.2}$. $\angle \mathbf{g}_1, \mathbf{b} = 78.8^\circ$, если $\mathbf{b} \parallel [00.1]$. (b) Отражение $\mathbf{g}_2 = 01.\overline{10}$. $\angle \mathbf{g}_2, \mathbf{b} = 20.6^\circ$. (c) Диаграмма искажений кристаллической решетки, вызванных винтовой дислокацией с вектором Бюргерса $\mathbf{b} \parallel [00.1]$. Векторы дифракции \mathbf{g}_1 и \mathbf{g}_2 спроецированы на плоскость пленки.

диаграммы на рис. 37, c. Вектор Бюргерса супердислокации $\mathbf{b} \parallel [00.1]$. Большой стрелкой, обращенной влево, обозначено направление пучка СИ, параллельное оси $[\overline{11.0}]$. На диаграмме нанесены проекции векторов дифракции $\mathbf{g}_1 = \overline{21.2}$ и $\mathbf{g}_2 = 01.\overline{10}$ на плоскость пленки.

Контраст изображения МТ1 выше в отражении $01.\overline{10}$, чем в отражении $\overline{21.2}$. Контраст уменьшается увеличением угла $\angle \mathbf{g}, \mathbf{b}$ от 20.6° до 78.8° . Известно, что контраст винтовой дислокации равен нулю, когда выполняется условие $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ при $\angle \mathbf{g}, \mathbf{b} = 90^\circ$. Поведение контраста МТ1 не противоречит утверждению о том, что супердислокация имеет винтовую ориентацию вектора Бюргерса.

Фазово-контрастные изображения были записаны на разных расстояниях между образцом и детектором. Одно изображение из серии показано на рис. 38, a. Кроме двух рассматриваемых МТ1 и МТ2 на изображении присутствует еще одна тонкая трубка, которая находится в контакте с МТ1. Конфигурация представляет собой пример контактного взаимодействия, которое описано ниже.

Размеры сечений трубок МТ1 и МТ2 изменяются в направлении роста кристалла. Это особенно хорошо видно на оптической микрофотографии

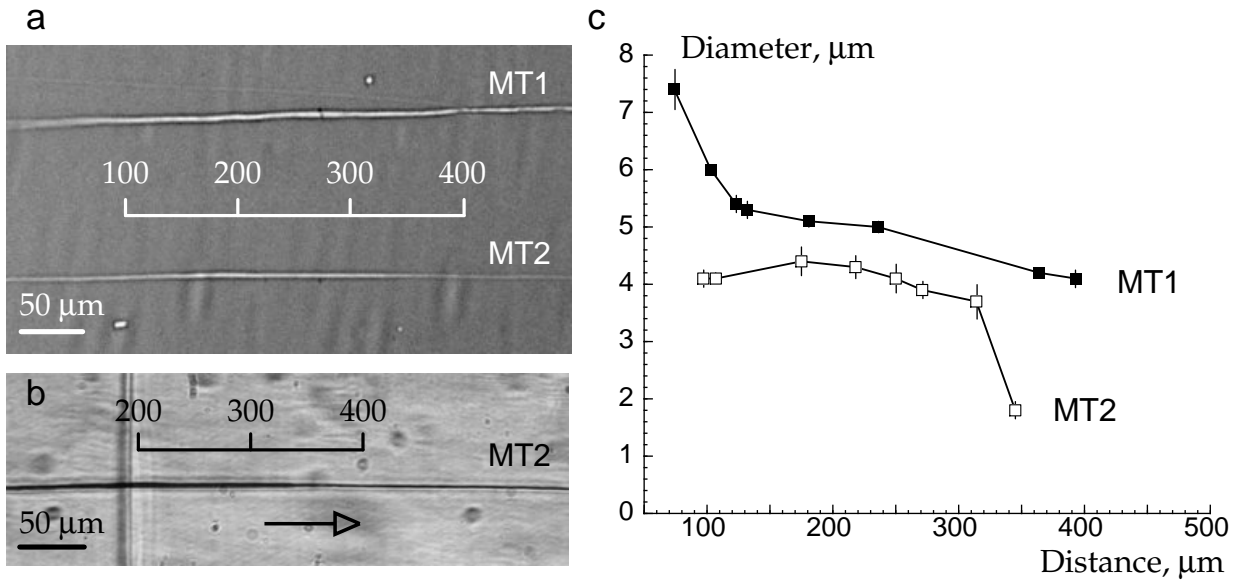


Рис. 38. (a) Фазово-контрастное изображение микротрубок MT1 и MT2. Расстояние от образца до детектора $r_d = 10$ см. (b) Оптическая микрофотография трубки MT2. Стрелкой показано направление роста кристалла. (c) График изменения диаметров сечений микротрубок MT1 и MT2 вдоль их осей, вычисленный при помощи программы FIMTIM.

(рис. 38,b). Диаметры сечений были определены путем компьютерной симуляции профилей относительной интенсивности с помощью программы FIMTIM. Профили были измерены на разных уровнях вдоль осей трубок.

Результаты моделирования показаны на рис. 38,c. Можно видеть, что между изменениями сечений MT1 и MT2 существует следующая корреляция. Для MT1 поперечный диаметр резко уменьшается от 7.4 до 5.3 мкм на интервале от 72 до 121 мкм вдоль ее оси, тогда как для соседней с ней MT2 уменьшение диаметра от 3.7 до 1.8 мкм происходит немного позже на интервале от 312 до 343 мкм. Коррелированное уменьшение сечений MT является признаком взаимодействия между дислокациями, расположенными внутри трубок. Рассмотрим эту идею более подробно.

3.2.2 Модель бесконтактной реакции

Схема протекания бесконтактной реакции между соседними МТ в растущем кристалле представлена на рис. 39, где поперечное сечение кристалла изображено в последовательные моменты времени t . Пусть MT1 и MT2, находящиеся на расстоянии d друг от друга, содержат винтовые супердислокации противоположного знака с векторами Бюргерса соответственно \mathbf{b}_1 и \mathbf{b}_2 . Направление роста показано светлой стрелкой, обращенной вправо (рис. 39,a). Предполо-

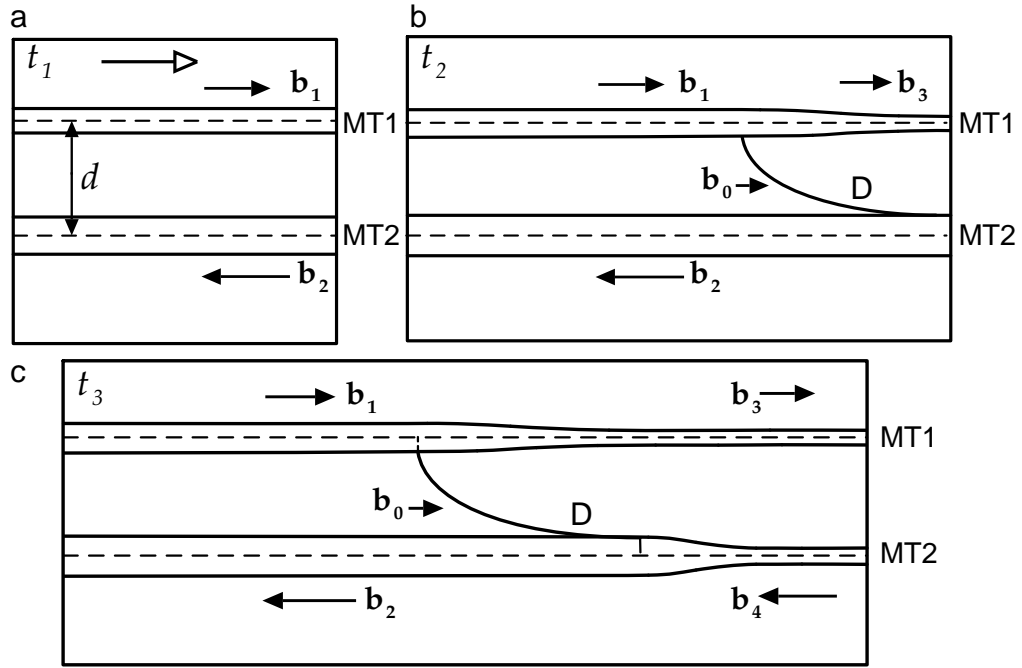


Рис. 39. Упрощенная схема протекания бесконтактной реакции между дислокационными микротрубками МТ1 и МТ2, представленная в поперечном сечении растущего кристалла SiC в последовательные моменты времени t_i . (а) Исходное состояние в момент времени t_1 . Направление роста показано стрелкой, обращенной вправо. Микротрубки содержат винтовые супердислокации с векторами Бюргера противоположных знаков b_1 и b_2 . (б) Промежуточное состояние в момент времени $t_2 > t_1$. МТ1 испускает дислокационную петлю D с вектором Бюргера b_0 . В результате вектор Бюргера МТ1 изменяется от b_1 до $b_3 = b_1 - b_0$, и радиус МТ1 уменьшается. Дислокация D перемещается от МТ1 к МТ2; фронтальный (верхний) сегмент D поглощается микротрубкой МТ2. (с) Конечное состояние в момент времени $t_3 > t_2$. МТ2 изменяет свой вектор Бюргера от b_2 до $b_4 = b_2 + b_0$; в результате трубка уменьшает свой радиус.

жим, что во время роста кристалла МТ1 испускает дислокационную петлю D с вектором Бюргера b_0 , которая, расширяясь, достигает поверхности МТ2 и реагирует с ее дислокацией (рис. 39, б). Фронтальный (верхний) сегмент D поглощается микротрубкой МТ2. В результате вектор Бюргера МТ1 изменяется от b_1 до b_3 , и радиус МТ1 уменьшается. Соответствующие дислокационные реакции можно описать уравнениями: $b_1 - b_0 = b_3$ и $b_2 + b_0 = b_4$, где b_3 и b_4 - векторы Бюргера микротрубок МТ1 и МТ2 после бесконтактной реакции (рис. 39, с). Польза от этой реакции может быть в том, что обе трубки уменьшают свои диаметры: МТ1 после эмиссии дислокации со сплошным ядром, а МТ2 – после ее поглощения. Можно ожидать, что уменьшение сечений обеих трубок постепенно приведет к их полному зарастанию.

Допустим, что микротрубки МТ1 и МТ2 имеют круглые сечения с радиусами r_1 и r_2 . Представим векторы Бюргера содержащихся в них

винтовых дислокаций через единичный вектор \mathbf{e}_z в направлении оси z : $\mathbf{b}_1 = b_1 \mathbf{e}_z$ и $\mathbf{b}_2 = b_2 \mathbf{e}_z$ (рис. 40, *a*). Испускание дислокации со сплошным ядром (\mathbf{b}_0) приводит уменьшению вектора Бюргера МТ1. Далее дислокация должна двигаться в направлении второй трубки МТ2, находящейся на расстоянии d . Однако слабой стороной модели является то обстоятельство, что винтовые дислокации в кристаллах SiC вряд ли могут скользить в обычном смысле вследствие большой величины векторов Бюргера. Принято считать, что такие дислокации являются сидячими. И хотя движение дислокационных петель вблизи микротрубок было описано в экспериментальных работах (см., например, [43]), механизм сдвига винтовой дислокации в карбиде кремния еще не совсем понятен.

Тем не менее, факт изменения сечений указывает на протекание реакции, а корреляция между этими изменениями позволяет допустить существование промежутка времени между эмиссией и поглощением дислокации D , в течение которого она покрывает расстояние d . Для анализа вероятности реакции используем изменение энергии ΔW , связанное с испусканием дислокации D .

Естественно предположить, что в области между трубками (но вдали от их поверхности) есть термические напряжения, возникшие в процессе роста кристалла. Обозначим соответствующее напряжение сдвига τ_0 . На рис. 40, *b* показан результат расчета ΔW для случая, когда МТ имеют векторы Бюргера сначала равной величины $7b_0$, а испускание дислокации

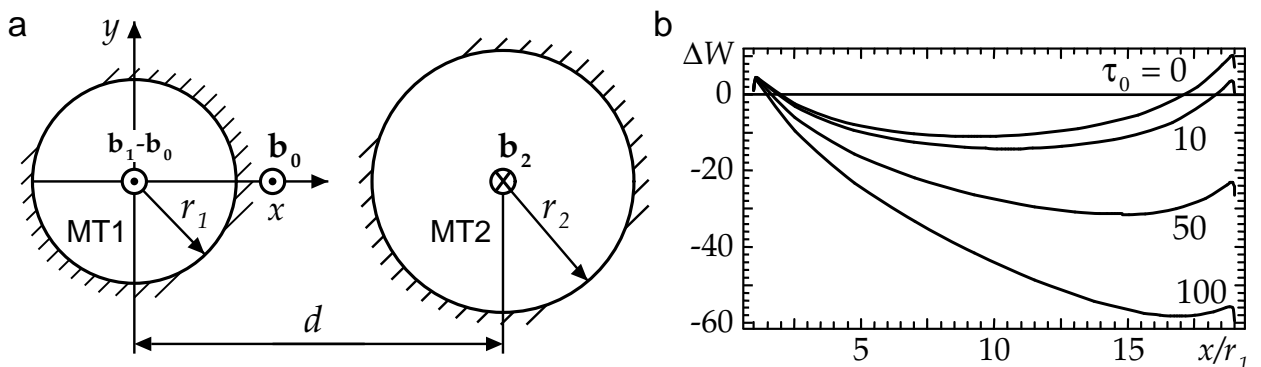


Рис. 40. (*a*) Диаграмма бесконтактной реакции между дислокационными микротрубками МТ1 и МТ2 в продольном сечении растущего кристалла. (*b*) Зависимость энергии ΔW , связанной с испусканием дислокации D микротрубкой МТ1 вблизи микротрубки МТ2, от нормированной дислокационной координаты x/r_1 для $d/r_1 = 20$, $b_1/b_0 = b_2/b_0 = 7$ и $\tau_0 = 0, 10, 50$ и 100 МПа. Энергия ΔW приведена в единицах $Gb_0^2/4\pi$.

происходит под действием сдвиговых термонапряжений τ_0 . Из рисунка видно, что существуют два энергетических барьера для обмена дислокацией; однако напряжение τ_0 уменьшает эти барьеры. В диапазоне значений напряжений от 10 до 100 МПа, характерных для роста объемных кристаллов SiC, первый барьер уменьшается довольно слабо, зато второй весьма сильно. Первый барьер имеет высоту примерно $1.5Gb_0^2/\pi$ на единицу длины дислокации, то есть $0.48Gb_0^3$ на один период решетки. Справедливо допустить, что такой барьер можно преодолеть за счет флуктуаций термонапряжений. Высота второго барьера примерно в пять раз выше при $\tau_0 = 0$, но она падает до $0.16Gb_0^3$ при $\tau_0 = 100$ МПа. Можно заключить, что термическое напряжение сдвига весьма эффективно способствует переносу дислокации и делает его возможным даже между МТ с большими векторами Бюргерса одного знака.

3.2.3 Контактные взаимодействия между микротрубками

Контактные взаимодействия между микротрубками были обнаружены в местах их плотных скоплений. Высокая плотность МТ характерна для начальной стадии роста, когда они распространяются из затравки в растущий кристалл или формируются на этапе образования трехмерных зародышей политипов [33, 243, 244]. Визуализация картин распределения МТ методом фазово-контрастного изображения позволила выявить некоторые характерные особенности, не описанные ранее в литературе.

Во время экспериментов запись изображений на детектор (с размером эффективных пикселей $\sim 0.2-0.3$ мкм) осуществлялась по мере перемещения образца в пучке СИ. При этом размер поля зрения позволял оценить площадь области наблюдения. Для выявления пространственной ориентации микротрубок образец поворачивали вокруг вертикальной оси.

В пределах области наблюдения с размерами порядка нескольких квадратных миллиметров наряду с единичными трубками нередко встречались весьма необычные конфигурации. Рисунок 41 демонстрирует группы МТ, которые можно охарактеризовать, подразумевая их дислокационную природу, следующим образом: (a) дислокационные пучки; (b) сливающиеся трубки, когда две МТ соединяются в одну; (c, d) спирали, сформированные двумя и более МТ, и полупетли, которыми заканчиваются двойные спирали. На рис. 42

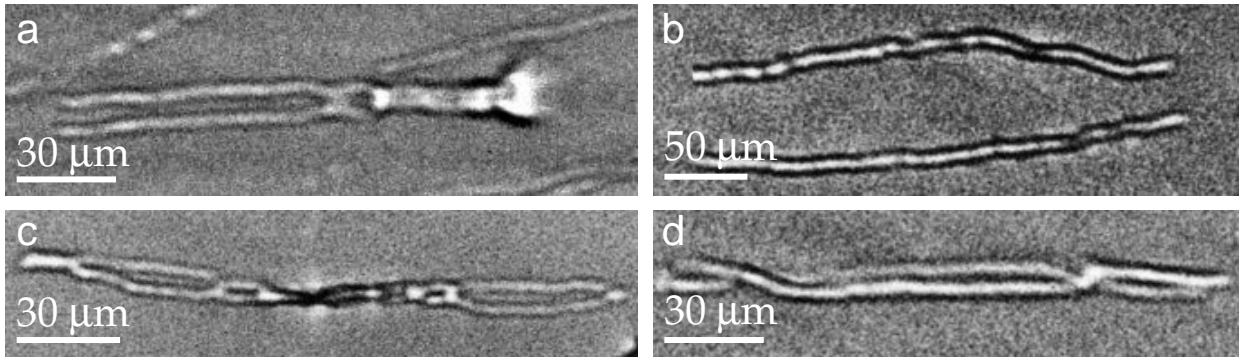


Рис. 41. Конфигурации, образовавшиеся в результате контактных реакций дислокационных микротрубок в кристаллах SiC. Показаны реакции слияния (*a*) и закручивания с формированием дислокационных диполей (*c*), (*d*). Момент сближения двух микротрубок отражает фрагмент (*b*).

представлена любопытная фигура, образованная трубкой, которые разветвилась на два сегмента меньшего диаметра.

Исходным пунктом в объяснении и теоретическом описании этих конфигураций было то, что они образуются в результате взаимодействия между дислокациями внутри трубок. Реакция происходит, когда трубки вступают в непосредственный контакт, то есть соприкасаются своими свободными поверхностями. Строго говоря, обоснование дислокационной природы МТ требует применения метода рентгеновской топографии. Однако неэффективность использования топографии в местах плотных скоплений дефектов не позволила воспользоваться этим прямым методом. Экспериментальные свидетельства

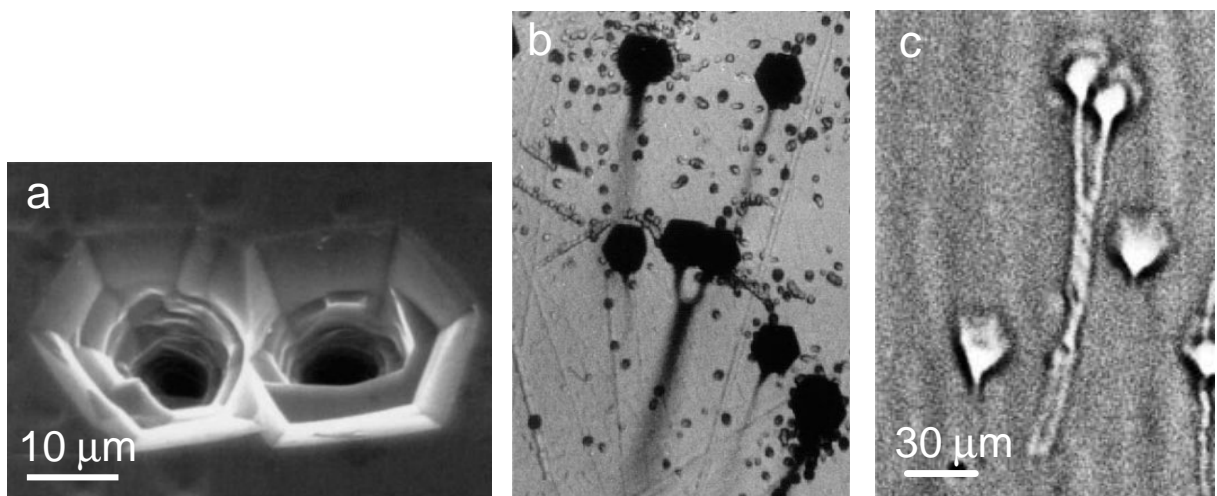


Рис. 42. Расщепление дислокационной микротрубки на две микротрубки меньшего диаметра. (*a*) СЭМ-изображение ямок травления, соответствующих дислокационным микротрубкам, образовавшимся в результате расщепления. (*b*) Оптическая микрофотография и (*c*) рентгеновское фазово-контрастное изображение того же места.

были получены другим путем.

В частности, провести различие между МТ и дислокациями со сплошным ядром можно методом химического травления. Хорошо известно, что в результате химического травления в расплаве гидроксида калия образуются ямки травления, расположенные на грани (0001)Si в местах выхода МТ или прорастающих дислокаций со сплошным ядром. Размеры ямок изменяются в зависимости от времени травления и от температуры травителя $T_{\text{кон}}$. Опытным путем установлено, что при $T_{\text{кон}} = 500^\circ \text{C}$ за первые 15 минут травления ямки приобретают сугубо разный размер. При этом ямка размером более 15 мкм соответствует микротрубке, а менее 15 мкм — дислокации со сплошным ядром [232]. Кроме того, различие ямок травления, которые формируются на винтовых и краевых прорастающих дислокациях, возможно по глубине ямки. Тонкую структуру ямок травления хорошо выявляет метод сканирующей электронной микроскопии (СЭМ). Однако и оптического микроскопа, как правило, вполне достаточно, чтобы оценить сравнительные размеры ямок.

СЭМ-изображение на рис. 42, *a* наглядно демонстрирует, как выглядят микротрубки на поверхности образца. Оптическая микрофотография того же места показывает, что пара ямок соответствует одной расщепленной трубке (рис. 42, *b*). Однако только метод фазово-контрастного изображения выявляет форму трубок, образующих столь необычную конфигурацию в объеме образца (рис. 42, *c*). Благодаря этому методу эффект расщепления микротрубки был экспериментально установлен и теоретически описан.

Вероятно, что процесс расщепления имеет место на фронте роста кристалла или вблизи него. Ранее в работе [245] был предложен механизм расщепления МТ на другую трубку и винтовую дислокацию со сплошным ядром за счет бокового движения поверхностной ступеньки винтовой супердислокации внутри МТ. Эффект ветвления трубок, обнаруженный в данной работе, теоретически описан как процесс расщепления дислокационной МТ на две трубки с дислокационным зарядом путем формирования скользящей дислокационной полупетли [246, 247]. Показано, что дислокация внутри трубки может расщепиться на две, если она преодолеет зону притяжения трубки и зону притяжения поверхности растущего кристалла

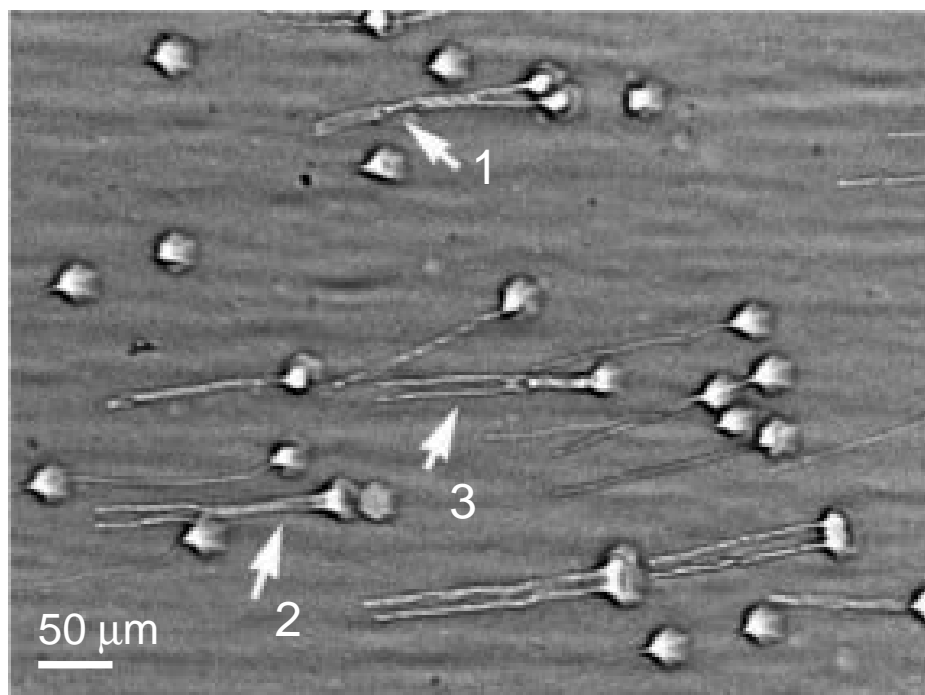


Рис. 43. Картина с изображениями микротрубок. Конфигурации, отмеченные стрелками с номерами 1, 2 и 3, образовались в результате реакций соответственно расщепления, слияния (коалесценции) и закручивания. Белые ореолы, охватывающие каждую трубку с одного из ее концов, представляют собой изображения ямок травления на поверхности образца.

[247]. В результате расщепления дислокации вектор Бюргера разделяется. Согласно правилу Франка, МТ должна уменьшить свой диаметр. При этом вероятность ее постепенного зарастания увеличивается.

Модель реакции расщепления не учитывает влияние близлежащих МТ, а также близость дефектных границ — в частности, границ включений инородных политипов. Экспериментальные наблюдения подтверждают справедливость этого допущения. В результате подсчета единичных и разветвленных МТ в областях наблюдения разного размера оказалось, что плотность первых не коррелирует с количеством реакций. Интересно, что в отличие от расщепления, реакции слияния МТ (рис. 41, *a*) протекают под действием коллективных эффектов. Картина с изображениями близко расположенных МТ (рис. 43), на которой видны группы, образовавшиеся путем слияния и закручивания трубок, иллюстрирует этот факт.

Контактные реакции расщепления, слияния и закручивания микротрубок были объяснены и теоретически описаны А.Г. Шейнерманом и М.Ю. Гуткиным [242, 246–249]. Авторами был разработан алгоритм и выполнено компьютерное моделирование эволюции ансамбля микротрубок. В целях обоснования

выводов, которые сделаны на основе вышеприведенных экспериментальных изображений, здесь приводится краткое резюме теоретического исследования.

При создании модели были приняты следующие допущения. Все МТ содержат только винтовые дислокации, то есть представляют собой МТ типичные для кристаллов SiC. МТ с векторами Бюргерса обоих знаков распределены случайным образом в окне моделирования. К движению МТ применимы принципы ньютоновской механики. В частности, трубки имеют эффективные массы, пропорциональные их объему. На „массы“ действуют силы, которые складываются из влияния соседних МТ и сил сопротивления. Под влиянием этих сил концы трубок перемещаются одновременно в двух направлениях: перпендикулярно и параллельно фронту роста. При этом первое перемещение обусловлено ростом кристалла, а второе вызвано влиянием соседних МТ и другими источниками напряжений. Реальные поля напряжений МТ представлены в упрощенном виде путем замены на поля напряжений прямых винтовых дислокаций, линии которых перпендикулярны плоской свободной поверхности полубесконечного упругого твердого тела. Под реакцией слияния подразумевается коалесценция с образованием одной МТ, вектор Бюргерса которой равен сумме векторов слившихся трубок. Если сумма равна нулю, то МТ перестает существовать. Таким образом крупные МТ постепенно уменьшают свои радиусы и векторы Бюргерса, а мелкие исчезают. Реакции способствуют частичному залечиванию крупных и устранению мелких МТ, тем самым уменьшая среднюю плотность трубок.

В результате моделирования установлено, что слияние МТ с векторами Бюргерса противоположного знака происходит по-разному в зависимости от влияния полей напряжений соседних МТ. Две взаимодействующие трубки могут сближаться как по кратчайшему пути, так и путем закручивания. Изображения соответствующих конфигураций показаны на рис. (рис. 41, *b–d*). Возникновение спиралей обусловлено коллективными эффектами в ансамбле случайно расположенных МТ, когда реакции имеют место вблизи плотных групп других МТ и под сильным влиянием „чужих“ полей напряжений. Появление спиралей может сопровождаться формированием диполей дислокаций, находящихся в трубках. Если векторы Бюргерса имеют противоположные знаки, но равны по абсолютной величине, диполь

превращается в полупетлю. С большой вероятностью можно утверждать, что такое событие зафиксировано на рис. 41,с. Реакция аннигиляции диполей означает остановку распространения МТ на поверхности растущего кристалла. В противном случае происходит уменьшение векторов Бюргерса и размеров сечений исходных МТ.

В заключение заметим, что образцы для исследования были приготовлены из кристаллов SiC, выращенных сублимационным сэндвич-методом [17] в условиях, которые обеспечивают получение высокого структурного совершенства. В частности, кристаллы росли при небольшом расстоянии между источником и затравкой с медленной скоростью (0.45 мм час^{-1}) при высокой температуре (2180° C). Локальное снижение качества было обусловлено политипной неустойчивостью, спровоцированной легированием растущих кристаллов различными примесями. Скопления МТ наблюдались вблизи включений паразитных политипов. Следует подчеркнуть, что любой вид вышеописанных реакций весьма желателен, поскольку они приводят к полному или частичному зарастанию МТ и уменьшению их плотности в кристаллах SiC. Проблеме исследования эволюции дефектной структуры в связи с политипной однородностью посвящена следующая глава.

3.3 Выводы

Экспериментально и теоретически изучены новые морфологические особенности дислокационных микротрубок в монокристаллах SiC. Показано, что цилиндрическая форма микротрубок неустойчива, а размеры сечений, определенные при помощи численного моделирования изображений, изменяются вдоль их осей. Предложен вакансионный механизм формирования неравновесных микротрубок, альтернативных по отношению к равновесным микротрубкам, предсказанным Франком.

Установлен эффект коррелированного уменьшения размеров сечений микротрубок, разделенных некоторым расстоянием. Эффект свидетельствует о том, что дислокации внутри трубок могут упруго взаимодействовать на расстоянии и вступать в бесконтактные реакции. В качестве модели бесконтактного взаимодействия рассмотрена реакция обмена дислокацией со сплошным ядром.

Фазово-контрастные изображения выявляют трансформации формы и размеров микротрубок, когда они касаются друг друга своими свободными поверхностями. Экспериментально наблюдаемые конфигурации нашли объяснение в рамках моделей контактных реакций слияния и расщепления дислокаций внутри трубок, которые происходят на фронте роста кристалла.

Взаимодействие микротрубок путем протекания контактных и бесконтактных реакций приводит к уменьшению их средней плотности в растущих монокристаллах карбида кремния.

4. Политипная однородность и эволюция дефектной структуры в процессе роста кристаллов SiC

Аннотация.

Глава посвящена исследованию процессов формирования и эволюции дефектной структуры в условиях стабилизации основного политипа растущего кристалла карбида кремния. Вначале рассматривается зарождение пор, вызванное появлением включений инородных политипов. Приводятся экспериментальные свидетельства важной роли дислокационных микротрубок в образовании и росте пор. Акцентируется внимание на особенностях поведения микротрубок в поле упругих напряжений включения.

Затем описываются наблюдения над включениями, порами и микротрубками при устойчивом росте основного политипа. Обсуждаются превращения дефектов. Экспериментально продемонстрировано повышение структурного совершенства в условиях политипной однородности.

В качестве исследуемых кристаллов взяты слитки SiC, полученные разными методами. В одном случае кристалл выращивали методом сублимации в условиях осевого температурного градиента между источником и затравочным кристаллом. В другом случае, кроме того, существовал боковой градиент температуры между центром тигля и стенками тигля. В результате кристалл рос в двух направлениях одновременно: перпендикулярно поверхности затравки и одновременно в поперечном направлении за пределы контура затравки. Результаты наблюдений излагаются последовательно для каждого случая.

4.1 Поры на границах включений инородных политипов

Формирование включений инородных политипов — это нежелательное явление, возникающее в процессе выращивания монокристаллов SiC методом сублимации. Включения образуются, как правило, на начальных стадиях роста вместе с другими дефектами структуры — дислокациями, порами и микротрубками (МТ). Явление взаимодействия включений, пор и МТ изучено далеко недостаточно. С целью его дальнейшего изучения в данной работе исследованы специальные кристаллы SiC, задача получения которых обусловлена следующей проблемой.

Для некоторых применений необходимо выращивать не только политипно-однородные, но и высоколегированные кристаллы SiC, в которых концентрация легирующей примеси составляет $> 10^{19}$ см⁻³. Это сложно сделать прежде всего потому, что легирование влияет на процессы образования политипов SiC. Установлено, что присутствие в ростовом контейнере значительного количества азота способствует образованию и стабилизации политипов с кубической (3C-SiC) и ромбоэдрической (15R и 21R-SiC) решетками. В то время как добавка редкоземельных металлов, а именно: Ge, Sn, Pb, с большой вероятностью приводит к зарождению и росту гексагональных политипов (прежде всего 4H-SiC) и их стабилизации [24, 33].

Монокристаллы, исследованные в данной работе, были получены в присутствии паров олова в зоне роста. Это способствовало тому, что на затравочном кристалле политипа 6H-SiC вырастал кристалл политипа 4H-SiC. Рост осуществлялся сублимационным сэндвич-методом в атмосфере аргона на С-стороне базисной грани (000 $\bar{1}$) кристалла-затравки. Температура роста была равна 2180°C, и скорость роста составляла 0.5–0.3 мм час⁻¹. Образцы в форме пластин были вырезаны перпендикулярно оси роста и обработаны с обеих сторон для удаления нарушенного слоя.

Исследование проводилось следующими методами. Визуализация дефектов на поверхности образцов, обработанной в расплаве гидроксида калия, осуществлялась методами оптической и сканирующей электронной микроскопии (СЭМ). Для регистрации СЭМ-изображений был использован растровый электронный микроскоп марки JEOL JSM-6330F. Для получения кар-

тин распределения пор и МТ в объеме кристаллов применялся метод фазово-контрастного изображения в синхротронном излучении (СИ). Включения инородных политипов выявлялись посредством метода фотолуминесцентной (ФЛ) микроскопии. Для возбуждения ФЛ использовалось ультрафиолетовое (УФ) излучение.

На рис. 44 показан пример совместного использования методов СЭМ и ФЛ-микроскопии. Поры на поверхности образца 4Н-SiC, обработанной расплавом гидроксида калия (KOH), выявляет метод СЭМ (рис. 44, *a*). Включения политипов, расположенные в том же месте под поверхностью образца, видны на ФЛ-микрофотографии (рис. 44, *b*). Включения политипа 6Н-SiC имеют желтый цвет. Сопоставляя изображения, замечаем, что поры находятся на границах включений, как это схематически показано на вставке к рис. 44, *a*.

Крупные включения обычно окружены многочисленными порами. Особенно крупные включения имеют характерную форму дендрита. На рис. 45 углы дендритного включения политипа 6Н-SiC обозначены цифрами 1–4 на фрагментах (*a*) и (*b*). На фазово-контрастном изображении по углам дендрита расположены поры трубчатой формы, проникающие глубоко внутрь кристалла. При этом некоторые поры сливаются (см. углы с номерами 3 и 4).

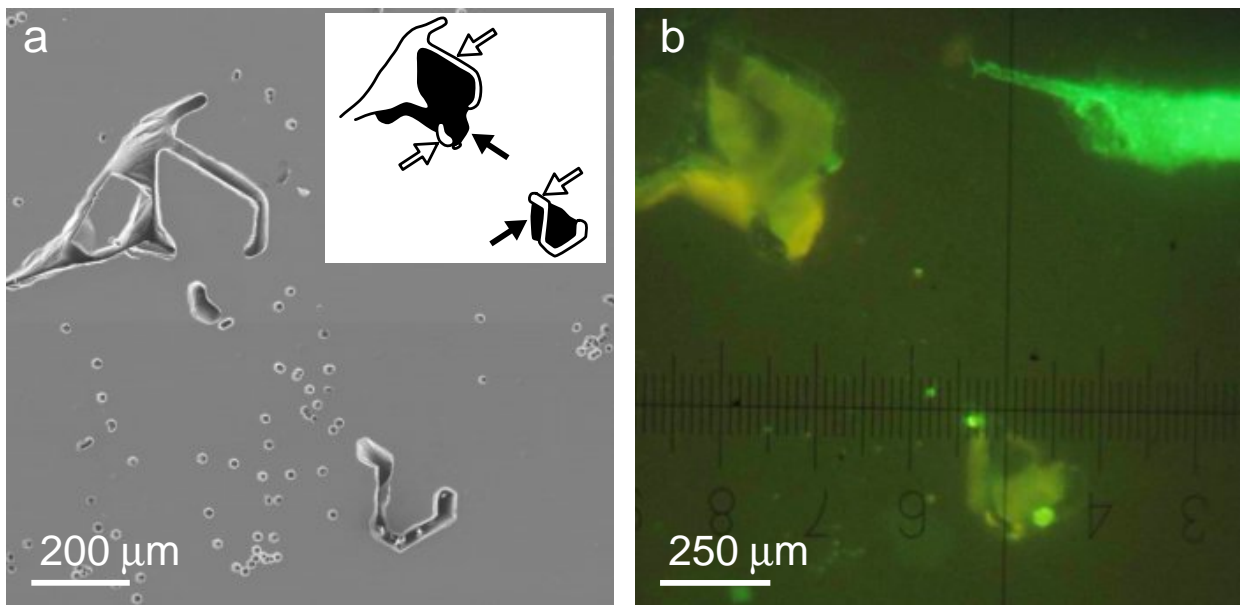


Рис. 44. (*a*) Поры на поверхности образца 4Н-SiC, обработанного расплавом KOH. Метод СЭМ. (*b*) Включения инородного политипа 6Н-SiC в матрице основного политипа 4Н-SiC. Метод ФЛ-микроскопии. На вставке поры и включения схематически изображены соответственно белым и черным цветом. Стрелки указывают на щелевидные поры.

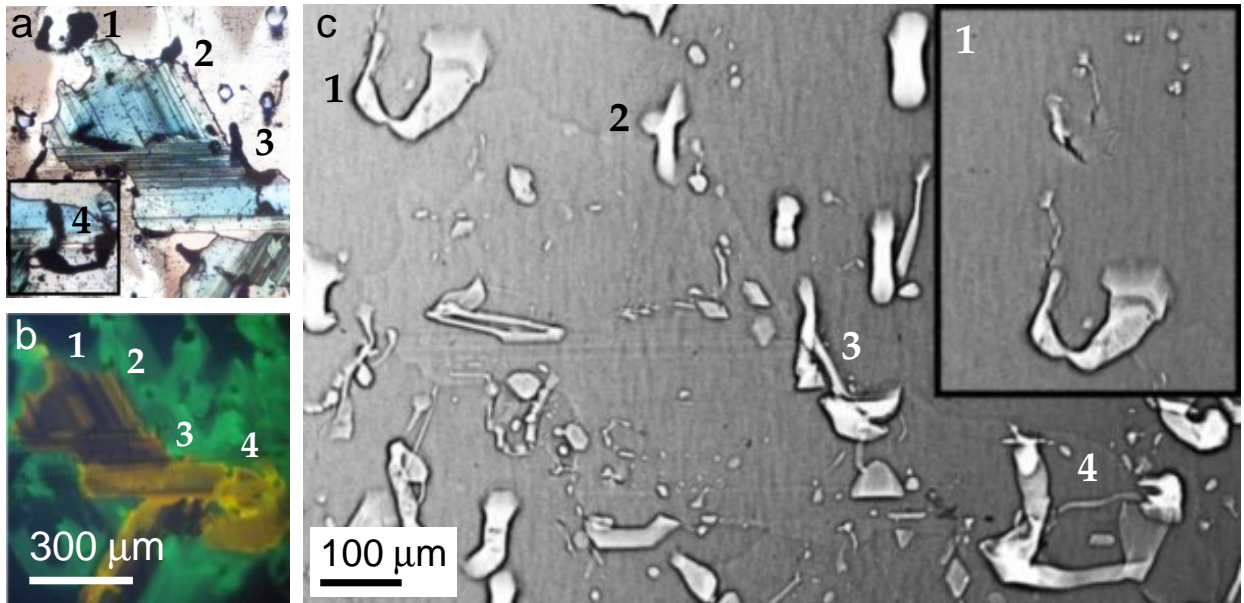


Рис. 45. Включение с дендритной структурой и поры в кристалле 4H-SiC. (a) Оптическая микрофотография. Цифрами 1–4 обозначены вершины дендрита. (b) Изображение включения политипа 6H-SiC в ФЛ-микроскопе. (c) Рентгеновское фазово-контрастное изображение пор в объеме образца. Вставка демонстрирует микротрубки и пору трубчатой формы, расположенную у вершины 1.

Фрагмент изображения с трубчатой порой, обозначенной цифрой 1, выделен рамкой в верхнем правом углу рисунка 45,с. Окружающие МТ наклоняются по направлению к поре, что указывает на возможность взаимодействия поры и МТ.

На изображениях включений привлекают внимание и вызывают интерес различия в форме пор, которые встречаются в виде узких щелевидных или более широких трубчатых пор. Последние не следует путать с микротрубками. Трубчатые поры локализируются исключительно по углам включений паразитных политипов, тогда как МТ могут возникнуть в любой области кристалла. Диаметры МТ не превышают нескольких микрон. Размеры трубчатых пор могут достигать нескольких сотен микрон. Дислокационный заряд трубчатых пор может варьироваться или быть равным нулю. Связь между дислокационными МТ и трубчатыми порами станет понятна в ходе дальнейшего изложения.

Включение, вблизи которого есть только щелевидные поры, представлено на рис. 46,а. Воздействие УФ-излучения на образец 4H-SiC, охлажденный до температуры 77 К, привело к появлению люминесценции темно-зеленого цвета, характерной для политипа 21R-SiC. Щелевидные поры на границе

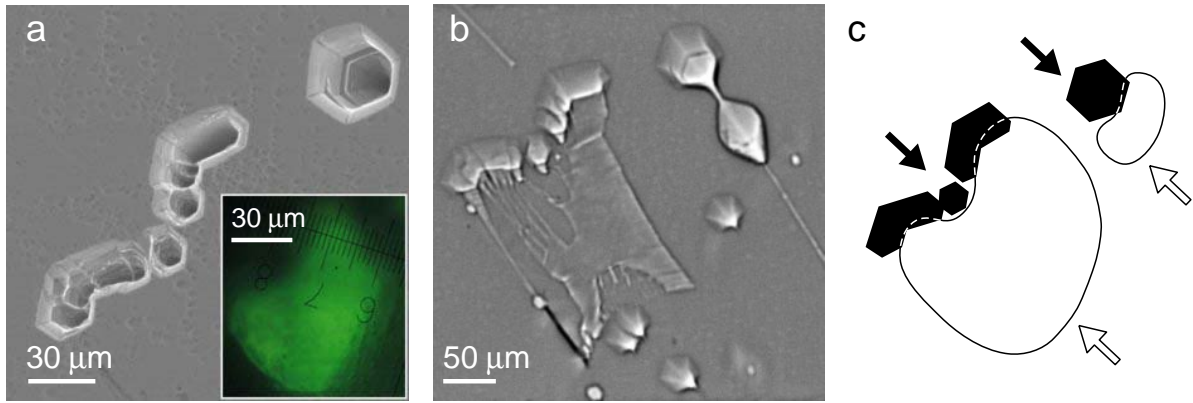


Рис. 46. (a) Шелевидные поры на поверхности образца 4H-SiC. Метод СЭМ. На вставке: ФЛ-микрофотография включения 21R-SiC. (b) Рентгеновское фазово-контрастное изображение того же места в объеме образца. (c) Диаграмма включения, пор и микротрубок.

включения политипа 21R распространяются глубоко внутрь кристалла. Фазово-контрастное изображение выявляет интересные особенности строения этих пор: они образовались путем слияния микротрубок (рис. 46, b).

Данные наблюдений воспроизводимо демонстрируют локализацию пор по границам включений инородных политипов. В ранее проведенных исследованиях [41, 43] этот факт был объяснен формированием пор из тех МТ, которые зародились на самих границах из винтовых супердислокаций. В данной работе мы исследуем вклад других МТ, которые находятся в соседних с включением областях растущего кристалла и перемещаются по направлению к нему под влиянием силы взаимодействия с границами включений. Эффект взаимодействия упоминался ранее; однако в опубликованных работах не было предложено никакого механизма, объясняющего, каким образом включение притягивает МТ из объема кристалла и накапливает их на своей границе.

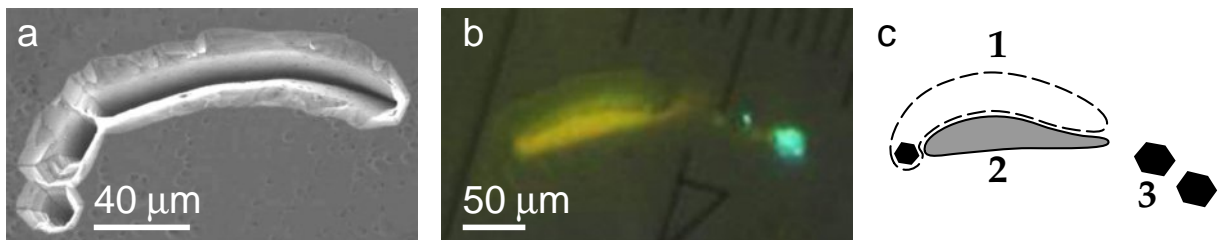


Рис. 47. (a) Изображение поры на поверхности образца. Метод СЭМ. (b) ФЛ-микрофотография включения 6H-SiC в матрице 4H-SiC. (c) Диаграмма поры 1 и включения 2. Ямки травления гексагональной формы 3 соответствуют дислокационным микротрубкам.

4.2 Роль микротрубок в формировании пор на границах включений

Под распространением микротрубок в кристалле SiC обычно понимается их перемещение перпендикулярно фронту роста. Рассматриваемый нами эффект взаимодействия МТ с границами включений должен проявляться через перемещение МТ параллельно фронту роста. В целях получения экспериментальных данных, подтверждающих факт параллельного перемещения, рассмотрим одно политипное включение и окружающие его микротрубки. На рис. 47 показана пора (*a*) на границе включения политипа 6H-SiC (*b*) в образце 4H-SiC. Контуры СЭМ- и ФЛ-изображений совмещаются на схеме, которая иллюстрирует также ямки травления, соответствующие микротрубкам (рис. 47, *c*). Пространственную ориентацию всей конфигурации можно представить себе, получив серию проекций при поворотах образца методом рентгеновского фазово-контрастного изображения.

Для этой цели был приготовлен специальный образец. Он имел форму узкой полоски, ширина которой (0.5 мм) сравнима с толщиной (0.4 мм), а длина намного больше ширины. Образец устанавливали на оси вращения гониометра так, чтобы длинная сторона была вертикальна и перпендикулярна пучку СИ. Ось вращения выводили в центр поля зрения детектора. Для получения проекций образец поворачивали в интервале от 0 до 180° с шагом 2°. Изображения регистрировались в пошаговом режиме.

Картины, выбранные из серии проекций, показаны на рис. 48. Первое изображение (рис. 48, *a*) получено, когда поле зрения находится на торце полоски, и торец перпендикулярен направлению пучка. На этой проекции трубки видны по всей своей длине. Некоторые МТ заметно отклоняются от направления роста. Сравнивая между собой два следующих изображения (рис. 48, *b-c*), мы замечаем что ширина поры имеет тот же порядок величины, что и диаметры МТ, а форма поры соответствует границе включения. Это указывает на то, что пора образовалась путем слияния МТ. Естественно предположить, что слиянию предшествовало накопление и группирование МТ на границе включения.

На рис. 48, *d* относительно толстая МТ, обозначенная цифрой 1, следует

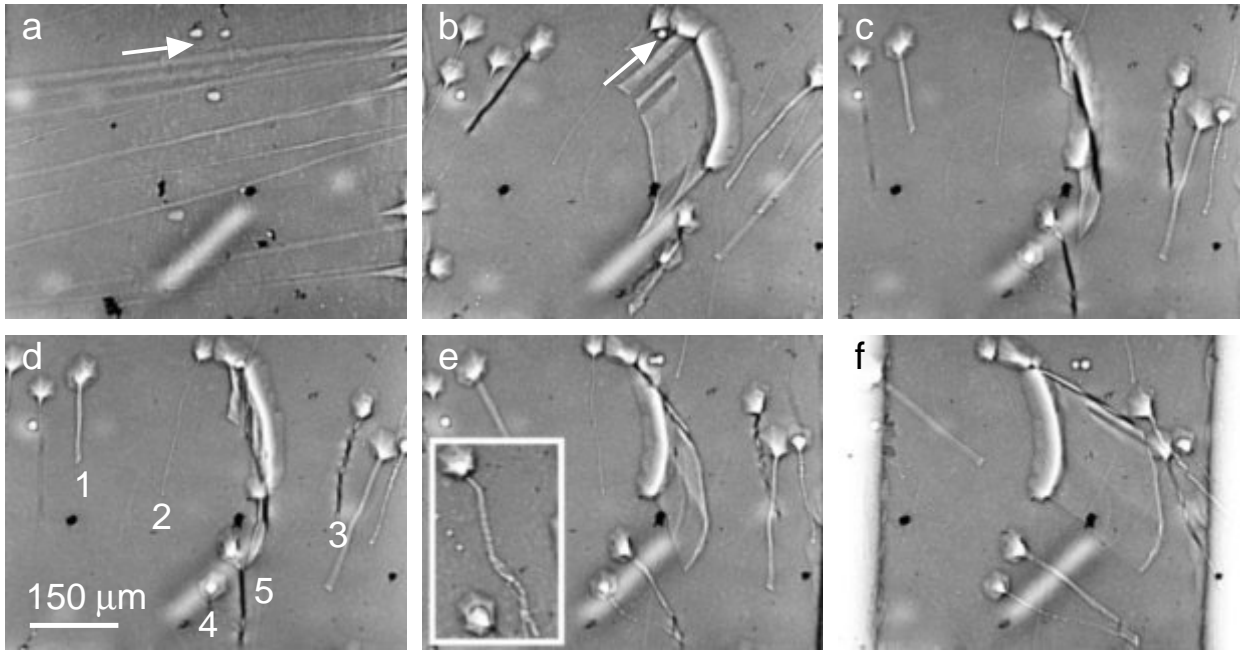


Рис. 48. Фазово-контрастные изображения из серии проекций, записанных на детектор при поворотах образца. На проекциях изображена та же область, что и на рис. 47. Направление роста кристалла указано стрелкой на фрагментах (a) и (b). Цифрами 1–5 (d) отмечены дислокационные микротрубки с морфологическими особенностями. Вставка на фрагменте (e) показывает микротрубки в другой части кристалла. Белое пятно, которое не перемещается при поворотах образца, является артефактом.

за направлением роста, тогда как намного более тонкая (и, следовательно, гораздо более подвижная) трубка 2 наклоняется к границе включения. С другой стороны, довольно толстая МТ с номером 3 также наклоняется к включению. МТ 4 вращается вокруг соседней с ней МТ 5, которая следует за направлением роста. Вставка демонстрирует закручивание двух трубок (рис. 48, e); они обе наклонились к другому включению политипа 6H-SiC, оказавшемуся в том же образце.

Описанные изображения наглядно показывают, какая роль принадлежит МТ в формировании пор на границах включений. Дислокационные МТ приближаются к границе включения, совершая при этом сложные перемещения параллельно и перпендикулярно фронту роста. Они взаимодействуют и вступают в контактные реакции [242, 246–248]. В частности, слияние и закручивание микротрубок происходят в поле упругих напряжений, внешнем по отношению к ним. На вопрос об источнике поля напряжений сам собой напрашивается ответ: поле принадлежит самому включению.

Суммируя наблюдения за поведением МТ в данном образце и в

других подобных образцах, можно выделить следующие закономерности. Границы включений инородных политипов притягивают дислокационные МТ. Последние перемещаются по направлению к включениям и группируются на их границах. Поры формируются за счет слияния МТ между собой. Для объяснения этих экспериментальных наблюдений, были сформулированы основные идеи:

- включение обладает собственными полями упругой деформации, обусловленными несоответствием параметров и/или разориентацией его кристаллической решетки относительно решетки матрицы;
- поля упругой деформации включения могут взаимодействовать с дислокациями внутри трубок;
- когда мигрирующая МТ достигает границы включения, она частично снимает напряжения несоответствия, создаваемые включением.

Поясним на качественном уровне идею о снятии напряжений несоответствия, создаваемых включением. Примем во внимание, что напряжения несоответствия, которые включение вносит в решетку матрицы, можно мысленно разделить на два типа. Первый тип снимается винтовой дислокацией, которая уменьшает пластическое искажение включения, а также его упругие поля. Диаграмма, иллюстрирующая размещение микротрубки на границе включения, представлена на рис. 49 для случая единственной остаточной компоненты

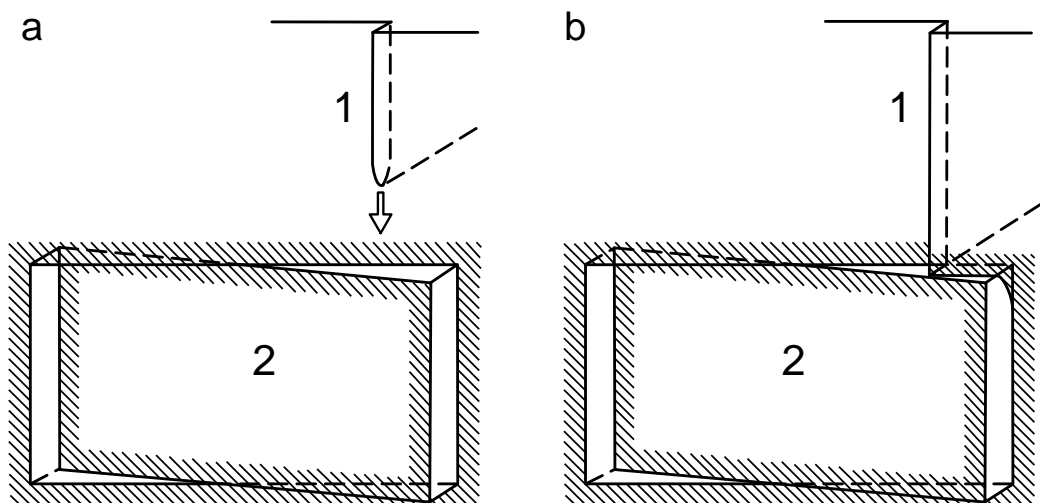


Рис. 49. (а) Притяжение винтовой дислокации 1 к включению 2, которое обладает напряжением сдвига. (б) Пластические искажения, вызванные включением, частично скомпенсированы пластическим искажением, которое вносит винтовая дислокация.

сдвига пластической деформации включения. Здесь винтовая дислокация локально уменьшает ступеньку на границе включения. Диаграмма показывает, что наибольший эффект может быть получен, если дислокация остается только в середине верхней грани включения, потому что в этом случае ступенька, внесенная дислокацией, частично компенсирует ту, которая вызвана включением, по всей его длине. Релаксация второго типа обусловлена пустым пространством внутри МТ и ее свободной поверхностью, которые обеспечивают локальное снятие несоответствия, вызванного включением.

Идеи были использованы для разработки детальных теоретических моделей [249]. В частности, боковое движение трубок теоретически описано как движение их приповерхностных сегментов [248]. В рамках модели упругого взаимодействия МТ с границами включения рассчитаны силы, действующие на МТ со стороны включения. Определены равновесные положения МТ. Установлено, что они находятся на границах включений.

4.3 Рост пор по механизму поглощения микротрубок

Механизм образования поры в результате притяжения МТ к границам включения подразумевает, что МТ приближаются к границе из соседних с включением областей растущего кристалла. Это должно приводить к изменению локальной плотности МТ. Изменение плотности можно заметить по ямкам травления, если охватить наблюдением как можно большую площадь образца вокруг включения. Для этой цели подходят методы оптической и сканирующей электронной микроскопии. СЭМ-изображение низкого увеличения, на котором показаны поры на границе включения политипа 21R-SiC (см. рис. 46), можно видеть на рис. 50. Оптическая микрофотография того же места, приведенная на вставке к рисунку, дополняет общую картину.

Для сравнения плотности ямок травления удобно разделить поле зрения на части, проведя линию через поры на границе включения. Обозначим области слева и справа от разделительной линии цифрами 1 и 2 соответственно. На оптической микрофотографии ямки травления имеют вид темных точек. В области 2 ямок меньше, чем в области 1. Под большим увеличением видно,

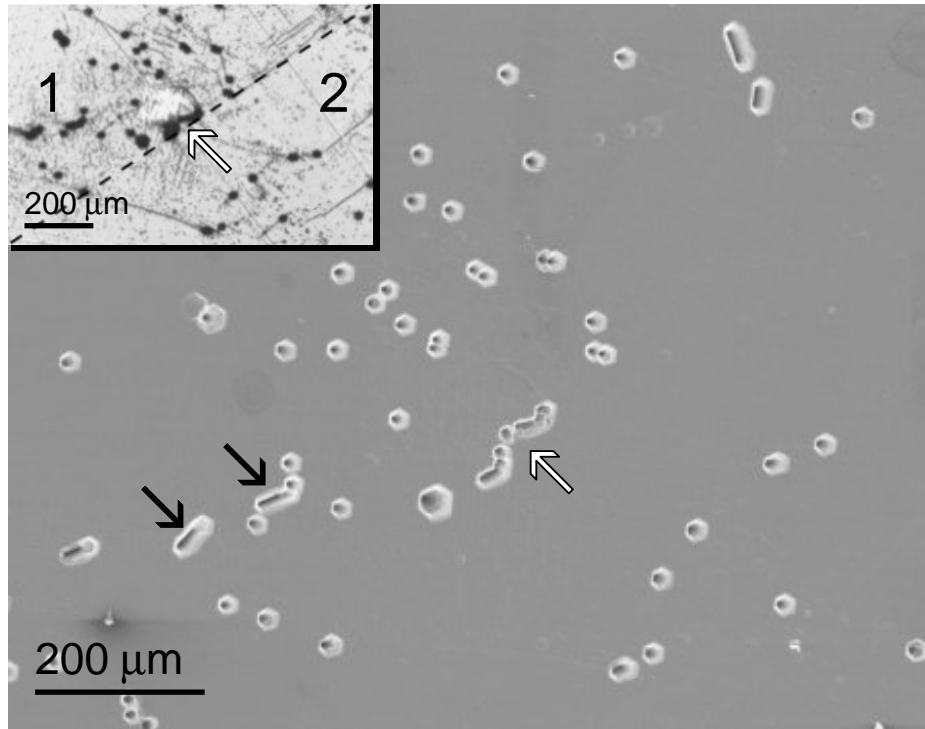


Рис. 50. Ямки травления на поверхности образца 4H-SiC. Метод СЭМ. Показана та же область, что и на рис. 46, но в более мелком масштабе. Поры отмечены стрелками. На вставке показана оптическая микрофотография. Пояснения в тексте.

что количество более крупных ямок уменьшилось в большей степени. Крупные ямки соответствуют дислокационным микротрубкам, снижение плотности которых можно объяснить процессом поглощения их порами.

Как происходит дальнейший рост поры? Можно представить следующий сценарий роста пор. Вначале поры еще нет, однако некоторые соседние с включением МТ притягиваются к нему, чтобы уменьшить напряжения, обусловленные несоответствием и разориентацией решеток включения и матрицы. Было показано, что в том случае, когда тензор пластической деформации имеет две исчезающие компоненты, МТ притягиваются к углу включения, где они находятся в положении равновесия [249]. Пусть первая МТ заняла свое положение равновесия в этом углу (рис. 51, *a*). Затем другая МТ, содержащая дислокацию того же знака, что и первая, притягивается включением и стремится попасть в то же положение равновесия.

Если включение обладает достаточной „мощностью“ (то есть пластические искажения велики), то сила притяжения, создаваемая включением и свободной поверхностью первой МТ, больше, чем сила отталкивания между дислокациями внутри трубок, и поэтому вторая МТ сливается с первой. Несколь-

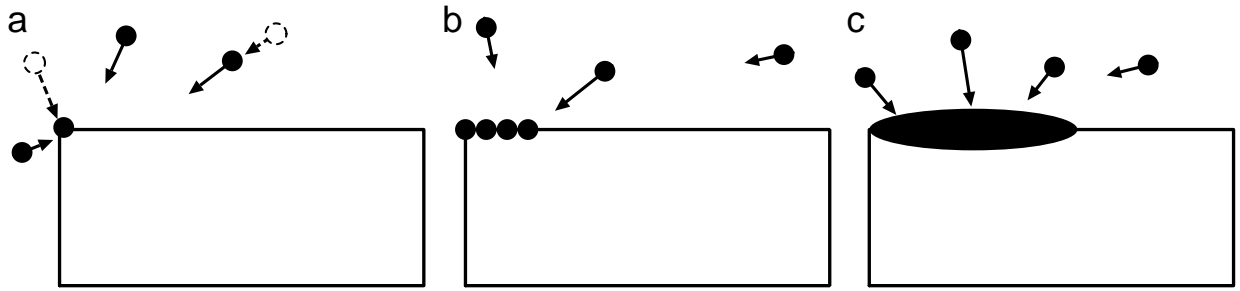


Рис. 51. (a, b) Зарождение поры на границе включения инородного полимера. (c) Рост поры по механизму поглощения микротрубок.

ко таких МТ, которые были притянуты к одному углу (рис. 51, b), группируются и образуют пору. После того как пора сформировалась, некоторые другие МТ перемещаются в то же положение равновесия на границе включения и поглощаются порой (рис. 51, c), обеспечивая ее рост и изменяя дислокационный заряд, накопленный на границе включения. Этот процесс продолжается до тех пор, пока пора не охватит всю границу включения, или пока пора не станет настолько большой, что включение с порой прекратит притягивать новые МТ. Отметим, что если включение достаточно велико и содержит свои собственные МТ, аналогичный сценарий может иметь место также и для тех МТ, которые подходят к границе из объема включения.

Путем теоретического моделирования был рассчитан режим роста поры на границе включения [249]. Режим зависел от параметров самого включения: его размера и величины вызванных им искажений решетки. В частности, с увеличением пластической дисторсии включения отдельные МТ трансформировались в группы, затем в поры ограниченного размера, а затем из пор ограниченных размеров в те, которые занимали всю границу включения.

В качестве экспериментальной иллюстрации завершающего этапа сценария роста пор, рассмотрим картину вокруг одного включения сложной формы. Особенностью его формы являются углы, соединенные относительно плавными участками. Желтое свечение люминесценции принадлежит политу 6Н в матрице 4Н-SiC (рис. 52, a). Фазово-контрастное изображение выявляет целую группу пор на границе включения. Щелевидная пора 1 охватывает край включения, а трубчатые поры 2–5 расположены по его углам (рис. 52, b-c). Форма пор отражает стадию их развития. Пора 1 зародилась в форме трубки из скоп-

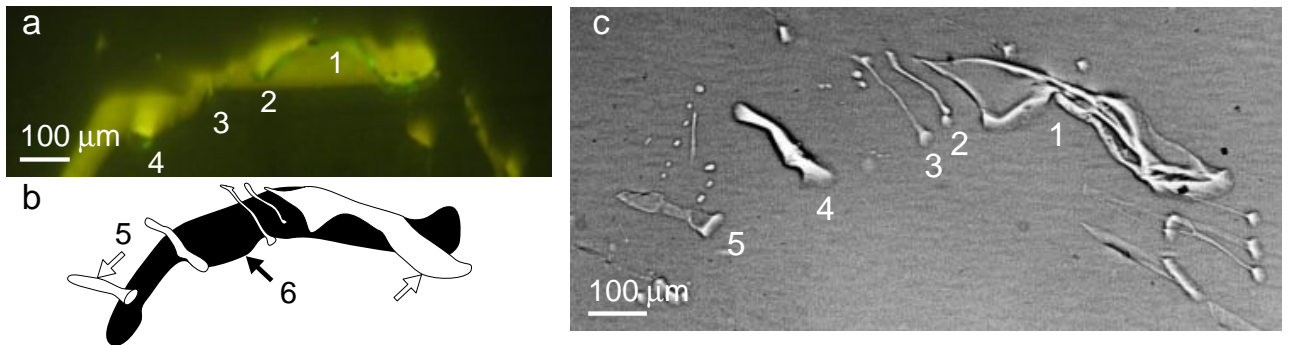


Рис. 52. Поры на границе включения 6H-SiC в кристалле 4H-SiC. (a) ФЛ-микротография включения. (b) Схема расположения пор 1–5 и включения 6. (c) Фазово-контрастное изображение щелевидной поры 1 и трубчатых пор 2–5.

ления нескольких МТ в том месте, где в углу включения были сосредоточены самые высокие напряжения. Затем эта пора постепенно изменила свою форму и, превратившись в щель, распространилась вдоль границы включения. Трубчатые поры 2–5 появились и стали развиваться позже, чем пора 1. Изображение, полученное в более мелком масштабе (на рисунке не показанное), убедительно демонстрирует, что в области вокруг включения микротрубок сравнительно мало. В то время как на довольно значительном расстоянии от включения локальная плотность МТ увеличивается.

Таким образом рост пор вокруг этого и других подобных включений с большой вероятностью происходит в результате последовательных актов притяжения и поглощения новых МТ, поступающих из окружающего объема кристалла. Процесс роста пор определяется параметрами включения. При этом поры накапливают дислокационный заряд. Последний формируется в результате суммирования векторов Бюргерса всех дислокаций, поглощенных порами.

Механизм роста пор не отвечает на вопрос о том, насколько обратим процесс их формирования? Экспериментальные данные, свидетельствующие о зарастании пор, описаны в следующем разделе. Они получены путем экспериментальных наблюдений, которые показывают, что монокристалл вновь становится сплошным в условиях политипной однородности.

4.4 Эволюция дефектной структуры при стабильном росте основного политипа

Зарождение включений паразитных политипов имеет место на начальной стадии роста кристалла SiC. В ходе дальнейшего роста основной политип, как правило, стабилизируется. Перед нами встает вопрос о том, каким образом будет изменяться вышеописанная структура из пор и микротрубок в условиях политипной однородности? Данный параграф обобщает экспериментальные наблюдения над кристаллами, выросшими в условиях осевого температурного градиента, когда размер сечения растущего слитка оставался примерно постоянным.

Для наблюдения процессов эволюции включений, пор и МТ в слитке в целом его необходимо разрезать на пластины. При этом распределение и плотность дефектов будут изменяться между пластинами. Проследить за изменениями можно, если ограничить область наблюдения и иметь возможность находить ее в каждой пластине. В процессе наблюдений образцы должны быть установлены в тех же положениях и в той же последовательности, в каких они находились в исходном кристалле. Для того, чтобы соблюсти все эти требования, был предложен и реализован следующий подход.

Выращенный кристалл разрезают на пластины перпендикулярно оси роста [0001]. Образцы нумеруют по направлению от кристалла-затравки до вершины. Пластины предварительно ориентируют на рентгеновском дифрактометре. Нарушенный слой удаляют химико-динамической полировкой с обеих сторон. На следующем этапе каждый образец исследуют методом фазово-контрастного изображения, предварив измерения интенсивности определением идентичности ориентации образцов с помощью съемки лауэграмм. Картины, записанные в одной и той же области наблюдения, сравнивают между собой.

Эксперименты проводились в полихроматическом синхротронном излучении путем совместного использования методов регистрации дифракционных и фазово-контрастных изображений. Настройка образцов выполнялась путем записи лауэграмм на плоскопанельный детектор большой площади. Лауэтопо-

граммы снимали на пленку в условиях, когда ширина пучка на образце большая. Для записи фазово-контрастных изображений в розовом пучке СИ на ПЗС-матрицу детектора высокого разрешения применялись кристаллический скинтиллятор и оптический объектив. Схема эксперимента, позволяющая сочетать оба метода, была изложена выше (см. раздел 1.4).

Из слитка 6H-SiC были приготовлены шесть пластин с номерами от I до VI по направлению роста от кристалла-затравки (I) до вершины (VI). В рассматриваемом нами случае поверхности пластин были разориентированы относительно базисной грани на 1 градус в сторону направления $[11\bar{2}0]$. Благодаря этому образцы устанавливались на гониометр примерно одинаково. Получение

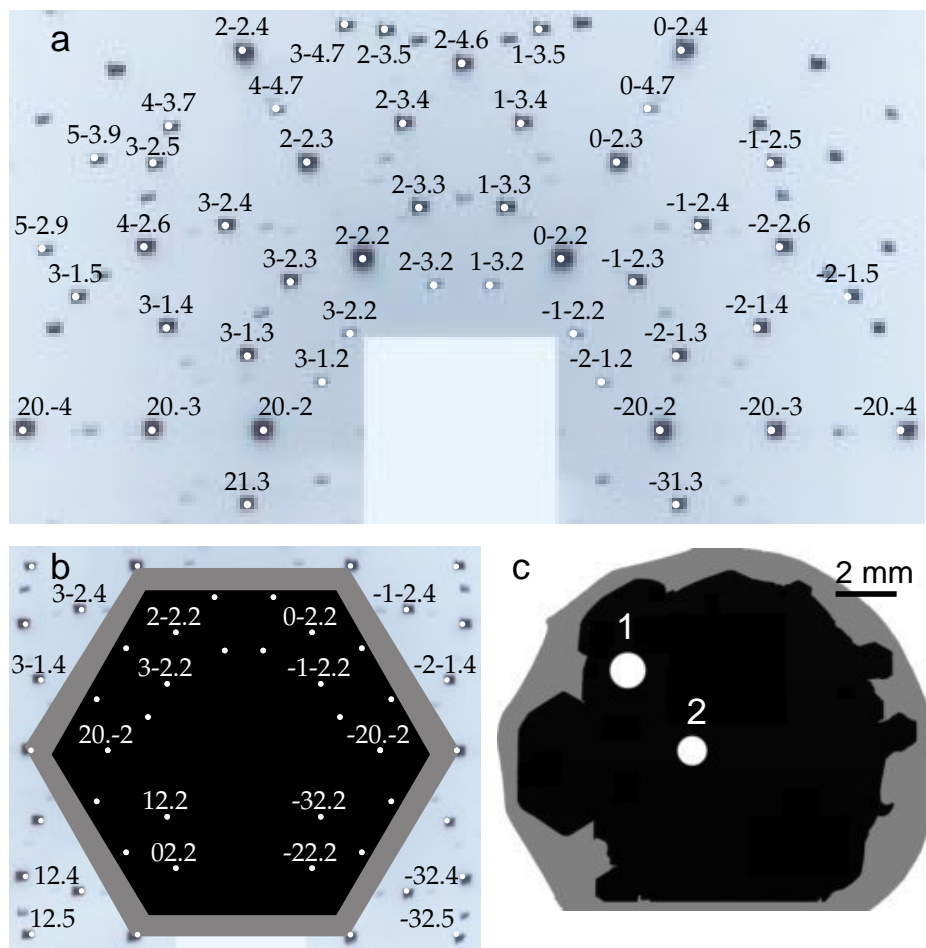


Рис. 53. (а) Лауэграмма кристалла 6H-SiC (0001). Направление рентгеновского излучения параллельно оси $[0001]$. Направление $[1\bar{2}10]$ расположено горизонтально. Расстояние от образца до пленки 91 мм. (б) Совпадение лауэграмм пластин I и II показано в виде наложения шестиугольных фигур соответственно серого (I) и черного (II) цвета, построенных на идентичных отражениях: $\bar{2}0\bar{3}$, $0\bar{2}3$, $2\bar{2}2$ и т.д. Лауэграммы зарегистрированы на разных расстояниях от образца. (в) Пластины I и II расположены в одинаковой ориентации. Положения области наблюдения 1 в пластинах I и II совпадают между собой. Ориентир находится в области 2. Пояснения в тексте.

симметричной лауэграммы завершало настройку образца (рис. 53, *a*). Совпадение лауэграмм гарантировало идентичность ориентации пластин (рис. 53, *b*). Последнее означало, что смена образцов в ходе эксперимента была подобна перемещению вдоль оси роста в объеме кристалла.

На следующем этапе осуществляется поиск выбранной области наблюдения. Образец, установленный в геометрии на просвет, перемещается до тех пор пока в поле зрения детектора не появится фазово-контрастное изображение группы микротрубок. Последние распространялись вдоль направления роста от границы с затравкой до вершины слитка. Вид группы мало изменялся между пластинами, благодаря чему она была выбрана в качестве ориентира. На фиксированном расстоянии от ориентира изображения записываются в пределах области наблюдения, размер которой варьируется от нескольких миллиметров до нескольких сантиметров. Размер одного изображения составлял от 0.3 до 1.5 мм по горизонтали. На рис. 53 область наблюдения очерчена кругом 1 (*c*). Начало отсчета находится в круге 2.

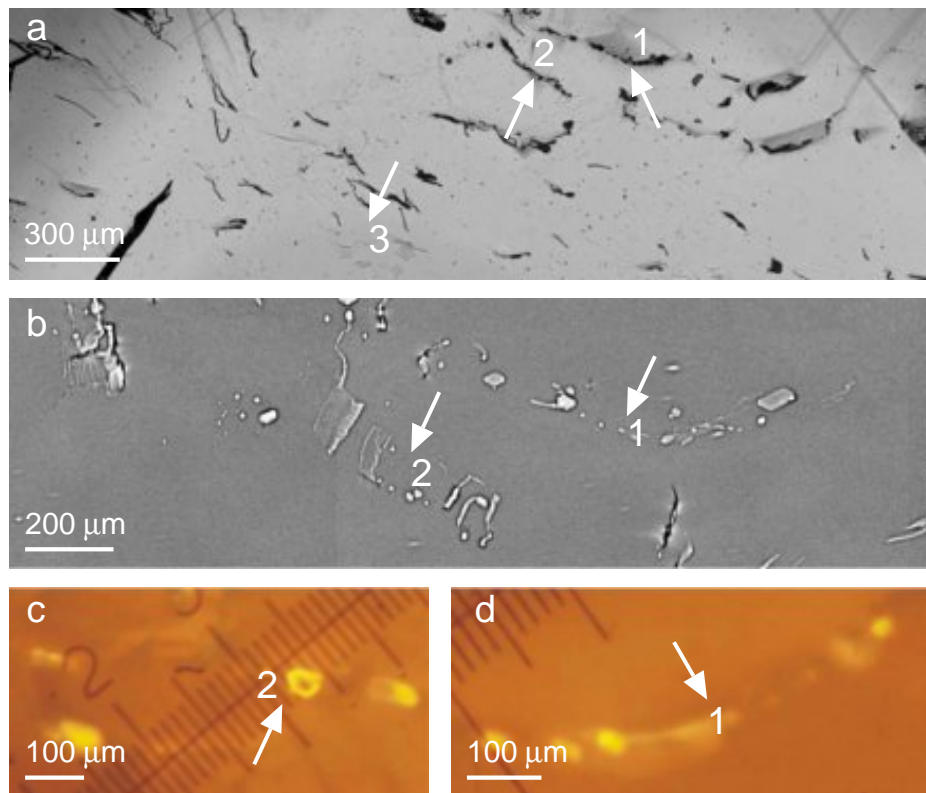


Рис. 54. (*a*) Оптическая микрофотография в проходящем свете. Стрелки указывают на поры (1, 2) и микротрубки (3). (*b*) Фазово-контрастное изображение пор (1, 2). (*c-d*) ФЛ-изображения включений 4H-SiC в матрице 6H-SiC. Стрелки (1, 2) указывают на включения, вдоль границ которых расположены поры.

Пластина I, ближайшая к кристаллу-затравке, имела самое большое количество включений паразитных политипов, пор и МТ. Для повышения достоверности результатов диагностики этих дефектов были привлечены дополнительные методы. Рисунок 54 демонстрирует картины области наблюдения, полученные на ФЛ-микроскопе в видимом свете (*a*) и в излучении люминесценции (*c-d*). На оптической микрофотографии поры 1 и 2 выглядят в виде щелей. Стрелка 3 указывает на группу МТ, которые распространяются в непараллельных направлениях. Эта особенность наблюдалась и для других МТ, отклонившихся от направления роста. Желтая люминесценция, возбужденная при температуре 77 К, принадлежит включениям политипа 4H-SiC. Путем сравнения оптических микрофотографий пор с ФЛ-изображениями включений установлено, что поры находятся на границах включений. Фазово-контрастные изображения позволяют выявить особенности некоторых пор. В частности, поры 1 и 2 (рис. 54,*b*) образованы трубчатыми или щелевидными сегментами.

Во время дальнейшего роста кристалла поры постепенно зарастают. На рис. 55,*a* показаны изображения тринадцати пор пластине I, обозначенных

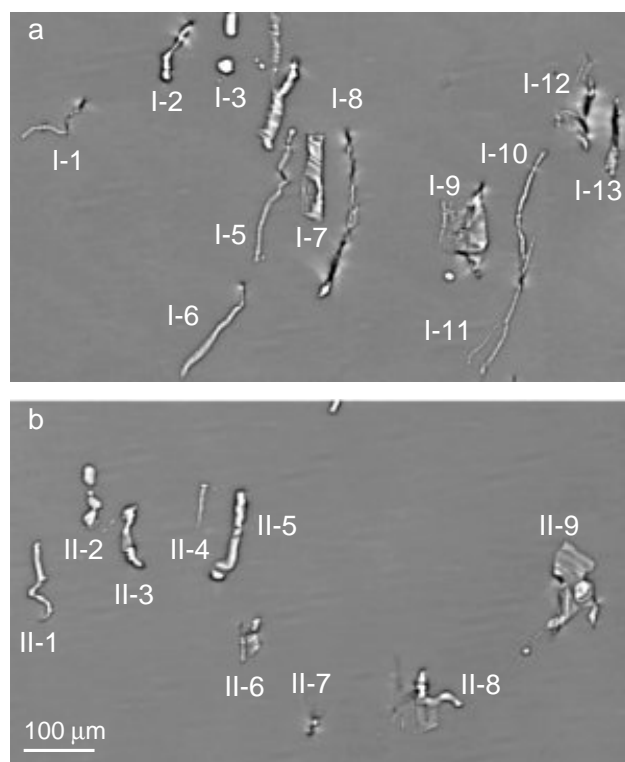


Рис. 55. Сравнение рентгеновских фазово-контрастных изображений пор, выявленных в области наблюдения в пластинах I (*a*) и II (*b*).

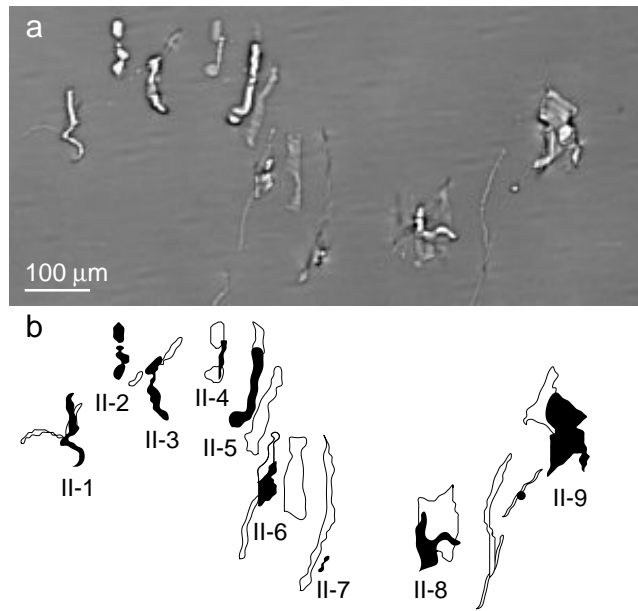


Рис. 56. (а) Наложение рентгеновских фазово-контрастных изображений пор, выявленных в области наблюдения в пластинах I и II. (б) Поры в пластине I изображены белым цветом и в пластине II – черным цветом.

последовательно от I-1 до I-13. В том же месте в пластине II их количество уменьшается до девяти (рис. 55, *b*). Факт уменьшения наиболее отчетливо проявляется при наложении изображений (рис. 56). Путем обводки контура каждой поры (рис. 56, *a*) построена диаграмма, на которой девять пор в пластине II выделены черным цветом (рис. 56, *b*).

Далее количество пор уменьшается более значительно. От девяти пор в пластине II (рис. 56) остаются только две поры в пластине III (рис. 57). Любопытное явление состоит в том, что поры мигрируют и заметно изменяют свою конфигурацию. Это хорошо видно на схеме (рис. 57, *b*), построенной с использованием наложения изображений (рис. 57, *a*). В следующих трех пластинах IV, V и VI поры не обнаружены.

Следует особо отметить факт появления новых МТ в пластине III, которые образуют плотные группы. Некоторые группы представлены на рис. 57, *a* и рис. 58, *a*. Плотность МТ слегка увеличивается в пластине IV (рис. 58, *b*), а затем снова уменьшается. В последней по направлению роста пластине VI (рис. 59) средняя плотность МТ низкая. Однако распределение МТ весьма неоднородно. На вставке к рис. 59 места локализации скоплений МТ в пластине VI выделены квадратами. На рисунке показано увеличенное изображение квадрата 1.

Обсудим теперь вышеописанные наблюдения в сравнении с литературными данными. Микротрубки в пластинах III, IV и VI (рис. 57, 58 и 59) имеют весьма необычные изображения. Тем не менее, можно заметить сходство по

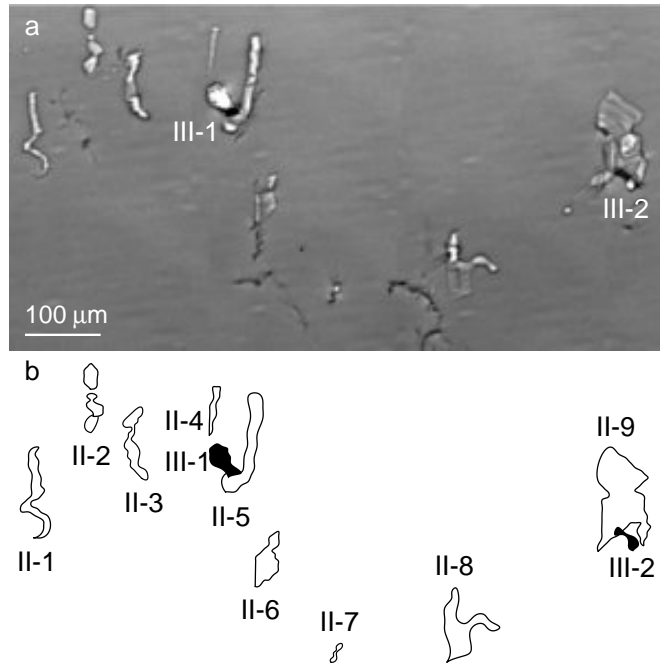


Рис. 57. (a) Наложение фазово-контрастных изображений пор в пластинах II и III. (b) Схема расположения пор в пластинах II (белый цвет) и III (черный цвет).

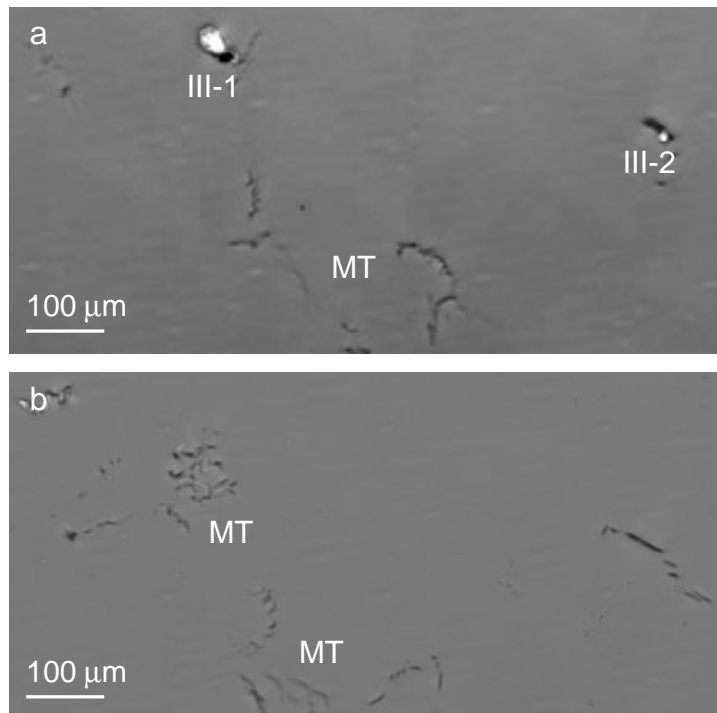


Рис. 58. Изображения единичных пор и скоплений микротрубок в области наблюдения в пластинах III и IV. (a) В пластине III остались 2 поры. (b) В пластине IV завершилось зарастание пор.

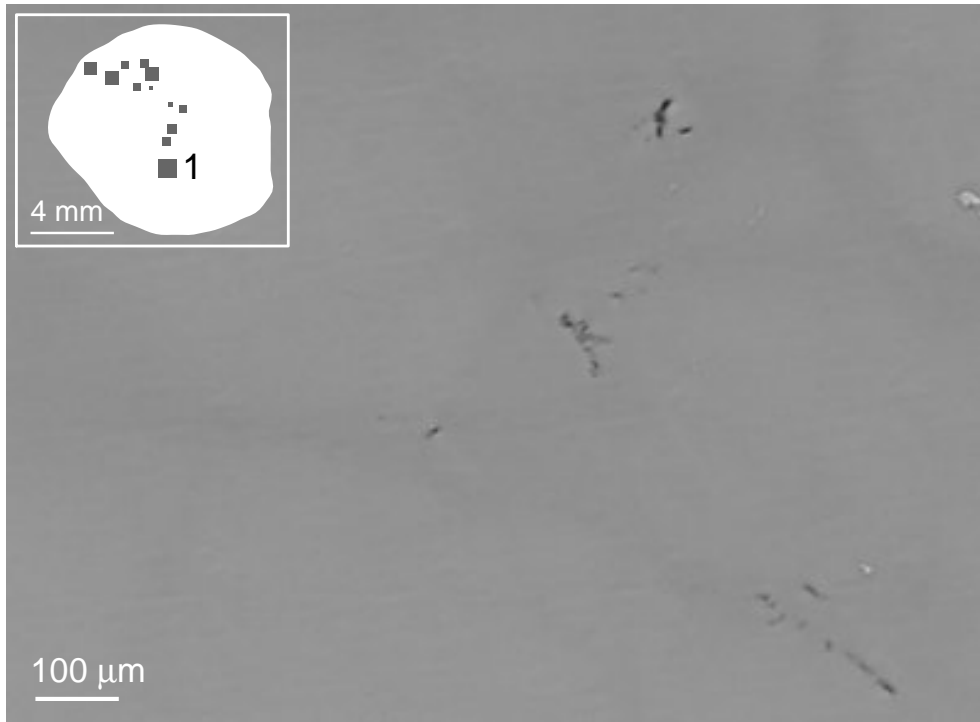


Рис. 59. Микротрубки в пластине VI. Вставка на рисунке показывает контур образца, на котором отмечены места скоплений микротрубок. Рисунок демонстрирует увеличенное изображение квадрата 1.

нескольким признакам между ними и ранее описанными трубками. Авторы одного исследования [37] классифицировали свои наблюдения, разделив микротрубки на два типа: МТ № 1 и МТ № 2. При этом МТ № 1 обладали признаками винтовых супердислокаций с полыми ядрами, предсказанных Франком. Они были параллельны оси c и распространялись в кристалле на протяжении, по крайней мере, нескольких миллиметров, не отклонялись от оси c . Трубкам первого типа соответствовали крупные ямки травления (> 1 мкм) гексагональной формы. Напротив, трубки второго типа распространялись только на короткие дистанции. Они составляли острые углы с направлением $[0001]$. Кроме того, МТ № 2 могли внезапно обрываться в кристалле. Классификация, предложенная в то время, когда минимальная средняя плотность МТ в двухдюймовых кристаллах 4H-SiC была $\sim 10 \text{ см}^{-2}$, использовалась и в другой работе [250]. Хотя факт резкого изменения ориентации осей МТ редко упоминался в литературе.

В цитируемой работе [37] данные были получены методом оптической микроскопии. В методе фазово-контрастного изображения пучок СИ проникает через образец насквозь. Изображения МТ имеют вид отрезков, длина которых

определяется толщиной образца и углом наклона МТ относительно базисной грани. Угол между нормалью к поверхности (0001) и направлением пучка СИ можно варьировать, изменяя как длину отрезков, так и знак контраста. Это позволяет наблюдать за изменениями формы МТ, которые можно использовать для выявления новых деталей их морфологии.

Ранее было отмечено, что в различных местах образца МТ „бегут“ во многих других направлениях вместо того, чтобы „лежать“ параллельно (или почти параллельно) оси *c*. Здесь приведены данные, которые составляют существенное дополнение к уже известным свойствам трубок. Поведение, предписанное ранее МТ № 2, свойственно тем трубкам, которые взаимодействуют с другими дефектами структуры.

В качестве аргумента в пользу взаимодействия МТ с границами включений политипов и с порами на границах приведем еще одну картину, типичную для ранней стадии роста кристалла. На ней изображения трубок имеют вид, не характерный для равновесных МТ, а свойственный, скорее всего, МТ № 2. Группа трубок, отмеченная белой стрелкой рис. 60, плохо различима на мелкомасштабном изображении (*a*), показывающем большую область наблюдения на небольшой картине. Эта группа представлена в увеличенном виде на рис. 60,*b*. Все МТ отклоняются от направления роста

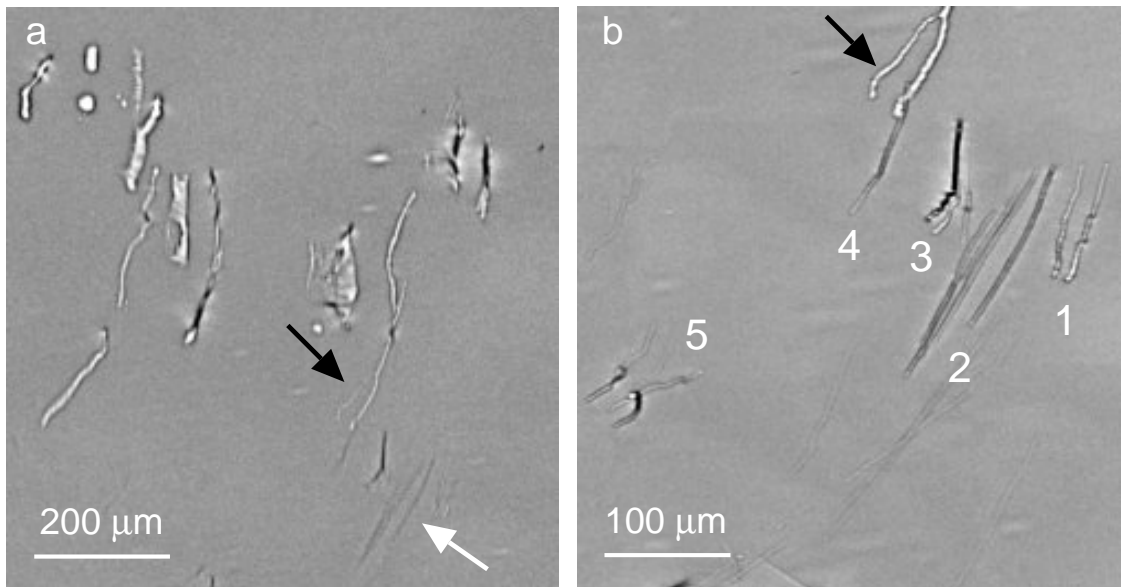


Рис. 60. (*a*) Фазово-контрастное изображение пор и микротрубок в пластине I. Белая стрелка указывает на группу микротрубок; черная стрелка — на пору. (*b*) Увеличенное изображение группы микротрубок, отмеченной белой стрелкой. Пояснения в тексте.

и перемещаются в разных направлениях: либо навстречу другу другу (1, 2 и 5), либо в направлении пор (3 и 4). Пора трубчатой формы, отмеченная черной стрелкой, притягивает МТ 4. Трубки из группы 3 явно наклоняются по направлению к поре. При этом трубки приобретают необычный черный цвет. Изменение знака контраста — это еще один признак, по которому можно отличить МТ от других пор (см. параграф 2.4). На черном участке изображения сечение трубки 3 пучком СИ имеет вид сильно вытянутого эллипса.

Наконец, изменение средней плотности также можно рассматривать как признак взаимодействия МТ между собой и с включениям политипов. Группы трубок 1–5 (рис. 60, *b*) не наблюдаются в пластине II, то есть они не прорастают дальше в кристалл. Их поглощают близлежащие поры. Суммируя наблюдения, делаем вывод, что, во-первых, изображения в виде коротких отрезков принадлежат именно МТ (см. рис. 57, 58, 59 и 60). Во-вторых, МТ взаимодействуют и вступают в реакции, происходящие особенно часто на начальном этапе роста. Поэтому они отклоняются от оси роста и изменяют направления своего распространения. В итоге часть из них аннигилирует и зарастает. Некоторые другие МТ группируются и формируют скопления.

Вышеописанные наблюдения позволяют сформулировать следующие механизмы дефектообразования, приводящие к изменению плотности включений, пор и МТ в растущих кристаллах SiC.

Генерация пор на ранней стадии роста. Весьма вероятный механизм образования пор — это притяжение МТ к границам включений инородных политипов, в результате чего большинство пор наблюдается именно на границах. Снимая деформационное и ориентационное несоответствие между включением и матрицей, эти поры могут притягивать дислокации и МТ из соседних областей. Таким образом, пора охватывают границу включения и накапливает дислокационный заряд, который является результирующим вектором Бюргерса всех дислокаций, поглощенных порой.

Генерация микротрубок на промежуточной стадии. Стабилизация основного политипа устраняет несоответствия решеток между включением и мат-

рицей, тем самым устраняя причины для генерации новых пор. На этой стадии начинается зарастание пор. Однако экспериментальные данные показывают, что одновременно с зарастанием пор может увеличиться количество МТ. Ниже описан возможный механизм исчезновения пор и увеличения плотности МТ в одно и то же время.

Во-первых, поры могут зарастать за счет роста кристалла в направлении, параллельном поверхности кристалла-затравки. При таком латеральном росте возможно превращение поры в микротрубку по механизму, описанному в работе [28]. Для этого пора должна содержать дислокацию с большим вектором Бюргерса. Во-вторых, поры достаточно сложной формы, зарастающие путем латерального роста кристалла, могут породить дислокационные МТ даже в отсутствие дислокаций. Примеры пор сложной формы можно видеть на рис. 55–57. Вокруг пор всегда есть ступеньки на растущей поверхности. Если число ступенек, ведущих вверх и вниз, одинаково, то условия для формирования винтовой дислокации внутри поры отсутствуют. В противном случае должна появиться винтовая дислокация с вектором Бюргерса, равным разности между величинами суммарной высоты ступенек, ведущих в противоположных направлениях. Рассмотрим первый случай. На рис. 61 и 62 показаны схематические изображения поры соответственно с простой выпуклой формой и со сложной формой. Если форма поры только выпуклая — например, круглая или эллиптическая, — то ее зарастание вряд ли приведет к образованию винтовых дислокаций (рис. 61).

Однако, если пора имеет более сложную форму и при этом содержит вогнутые фрагменты (рис. 62, *a*), можно ожидать, что ее зарастание

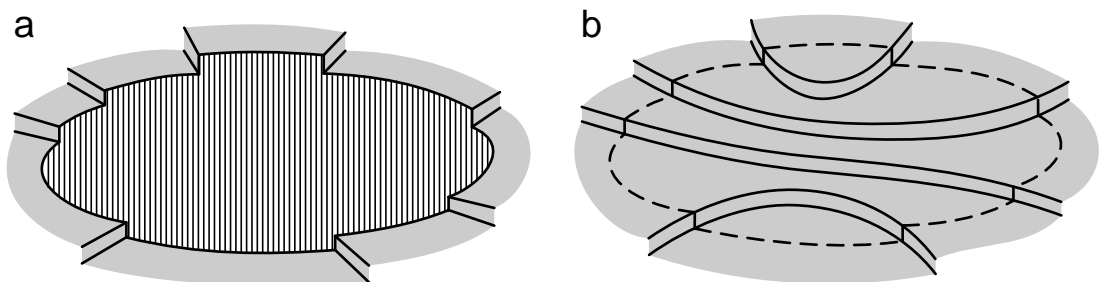


Рис. 61. Пора выпуклой формы имеет одинаковое количество ступеней, направленных вверх и вниз. Такая пора не содержит винтовых дислокаций. (*a*) Открытая пора. (*b*) Зарастающая пора.

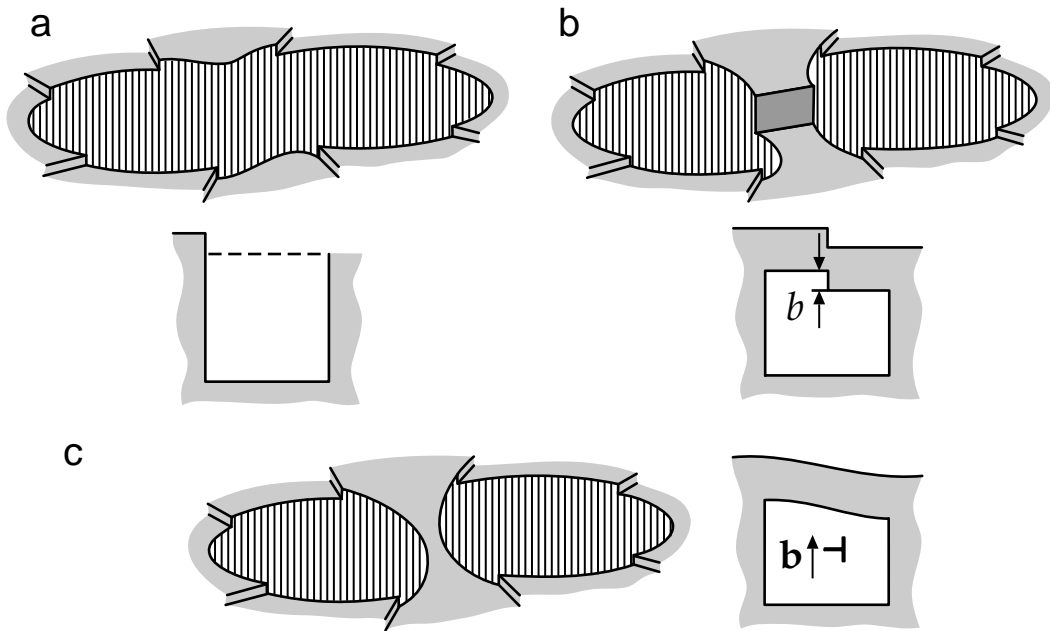


Рис. 62. (а) Пора сложной формы имеет одинаковое количество разнонаправленных ступеней и сначала не содержит винтовой дислокации. (б) Заращение поры начинается с образования мостика *S*-типа. Если большая ступенька на мостике компенсирует маленькие ступеньки вокруг двух новых пор, то винтовые дислокации не появляются. (с) Заращение поры начинается с мостика *D*-типа. Если ступеньки вокруг двух новых пор не компенсируют друг друга, появляется дислокационная полупетля. Сегмент краевого типа находится под мостиком *D*-типа, а два сегмента винтового типа находятся во вновь образовавшихся порах.

начнется с образования мостика между двумя противоположными вогнутыми фрагментами в узкой части поры (рис. 62, *b-c*). Этот мостик разделит первоначальную пору на более мелкие. Если две новые поры имеют неодинаковое количество разнонаправленных ступенек на поверхности роста, то разница может быть скомпенсирована образованием больших (или маленьких) ступенек на самом мостике. Обозначим мостик со ступенями буквой *S* (рис. 62, *b*). Заращение поры, разделенной мостиком *S*-типа, может произойти без формирования винтовых дислокаций. В противном случае, имея гладкую поверхность, мостик будет содержать искажение в виде полупетли супердислокации (рис. 62, *c*). Обозначим мостик с дислокацией буквой *D*. Сегмент полупетли, который является дислокацией краевого типа, находится под мостиком *D*-типа. В то же время два винтовых сегмента противоположных знаков оказываются внутри вновь образовавшихся пор. Эти новые поры могут стать зародышами дислокационных микротрубок. Отметим, что аналогичный механизм зарождения винтовых дислокаций на включениях

второй фазы впервые предложил А. Чернов [251]. Зарождение пары МТ на инородном включении в кристалле 4Н-SiC экспериментально наблюдали авторы работы [25]. По описанному механизму пара вытянутой формы, заросшая с образованием множества мостиков *D*-типа, способна породить МТ с дислокациями разных знаков, радиусы которых будут определяться величиной их векторов Бюргера. Изображения подобных массивов МТ можно видеть, например, на рис. 58.

Эволюция микротрубок на поздней стадии. Дальнейшее развитие ситуации зависит от того, образуются новые включения паразитных политипов или нет. Если образуются, то вышеописанные стадии 1 и 2 повторяются. В условиях устойчивого роста основного политипа в ансамбле МТ происходят процессы самоорганизации. Дислокационные МТ упруго взаимодействуют и вступают в реакции друг с другом, а также с дислокациями со сплошным ядром. В результате некоторые из них уменьшают свои векторы Бюргера или аннигилируют и затем зарастают. Другие образуют плотные группы, удаленные друг от друга (рис. 59) и могут продолжать распространяться внутри растущего кристалла. В конце процесса роста плотность МТ, как правило, уменьшается.

4.5 Кристаллы SiC, полученные методом свободного распространения

4.5.1 Структура кристаллов

Вышеприведенный анализ эволюции микротрубок (МТ) не акцентирует внимание на том, что эти дефекты, как правило, проникают в растущий кристалл из кристалла-затравки. В то же время известно, что прорастание дислокаций и МТ весьма характерно для сублимационного выращивания монокристаллов SiC. Проникновение этих дефектов можно ограничить, если проводить процесс в условиях теплового поля, которое обеспечивает слитку возможность распространения за пределы контура затравки. В ранее описанных опытах [53–56] в таких кристаллах была зафиксирована более низкая плотность дислокаций и микротрубок по сравнению с затравкой. При этом особый интерес представляет возможность быстрого увеличения размера

слитка SiC [252, 253], так как максимальный размер, достигнутый в настоящее время, все еще уступает размерам слитков Si (не менее чем в полтора раза).

В условиях теплового поля нормальный и латеральный рост происходят в течение одного процесса. При этом направление нормального роста параллельно оси $[0001]$, а направление латерального роста составляет острый угол с осью $[0001]$. Соответственно этому увеличивается поперечное сечение растущего слитка по отношению к сечению кристалла-затравки. Авторы технологии, принципы которой изложены ниже, предложили оригинальное название метода: свободное распространение [55]. В условиях свободного распространения формируется габитус секториально построенного гексагонального кристалла.

Процесс роста объясняет схема на рис. 63, *a*. На первой стадии S_1 кристалл SiC растет в направлении оси $[0001]$, то есть нормально к поверхности затравки 1, и в то же время увеличивается в боковом направлении так, что отношение скорости бокового роста к скорости осевого роста составляет величину от 0.35 до 1.75. После того, как желаемый диаметр достигнут, латеральный рост подавляется; в то же время осевой рост усиливается на второй стадии S_2 . Отношение скоростей уменьшается до величин между 0.1 и 0.3. Выращенный таким образом кристалл состоит из центральной области 2, расположенной над затравкой 1; латеральной области 3 и материала 5, выращенного в

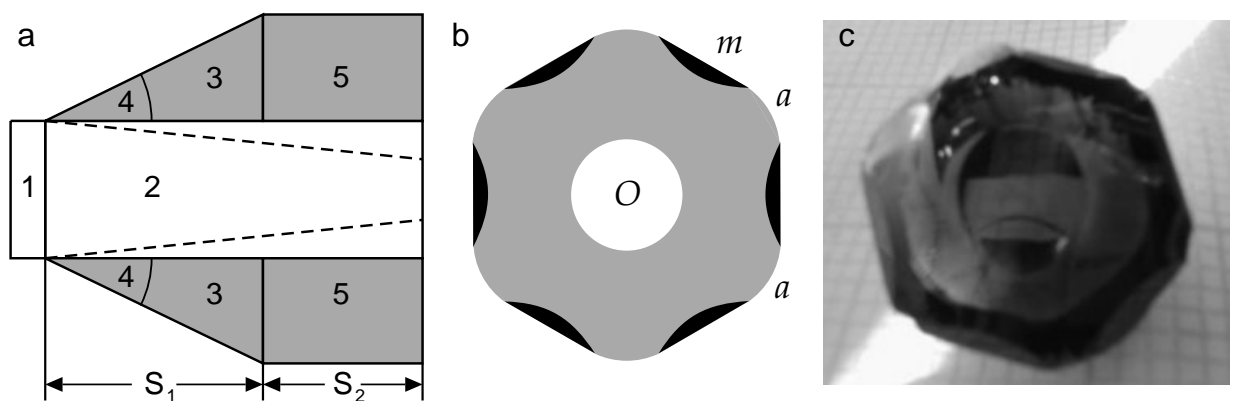


Рис. 63. (а) Чертеж монокристалла SiC, выращенного методом свободного распространения [55]. Вид сбоку. S_1 – первый этап роста, S_2 – второй этап роста. 1 – затравка; 2 – центральная область слитка; 3 – латеральная (боковая) область слитка; 4 – угол латерального роста; 5 – область аксиального роста. Пунктиром показано уменьшение размера центральной области. (б) Диаграмма секториально построенного гексагонального кристалла SiC. Вид сверху. O – грань базиса, t и a – грани призматического пояса. (в) Фотография кристалла, вид сверху.

направлении оси $[0001]$. Условия роста выбирают так, чтобы уменьшить размер центральной области, увеличив при этом угол бокового роста ϕ до величины существенно больше 25° и предпочтительно больше 45° . Отметим, что боковой рост лимитируется размерами тигля.

Для описываемых слитков затравками служили кристаллы $6H\text{-SiC}$ (0001) диаметром 8 мм с плотностью дислокаций и МТ соответственно $10^3 - 10^4 \text{ см}^{-2}$ и 10 см^{-2} . Процесс роста осуществлялся в атмосфере аргона при давлении 0.1 миллибар и температуре $2000\text{--}2300^\circ \text{C}$. В результате выращивания в условиях осевого и бокового градиентов температуры кристаллы SiC увеличивали свой поперечный размер в 3–5 раз по сравнению с затравкой и приобретали гексагональный габитус (рис. 63, *b–c*).

На рис. 64, *a* показана схема расположения граней, имеющих на кристалле, полученном методом свободного распространения. Затравка находится у основания слитка (рис. 64, *b*). Грань базиса O расположена над затравкой. Хорошо видно увеличение сечения, достигнутое на первом этапе роста (S_1), когда сформировались наклонные грани R , пересекающие грани гексагональной призмы m . Можно предположить, что в той области, где поверхность слитка покатая и гладкая, произошел переход к осевому росту (S_2). Кристалл, показанный на фотографии, имеет 20 мм в диаметре и 20 мм в высоту. Другие подобные кристаллы были до 40 мм в диаметре. Образцы для исследования были вырезаны параллельно грани базиса и граням призм.

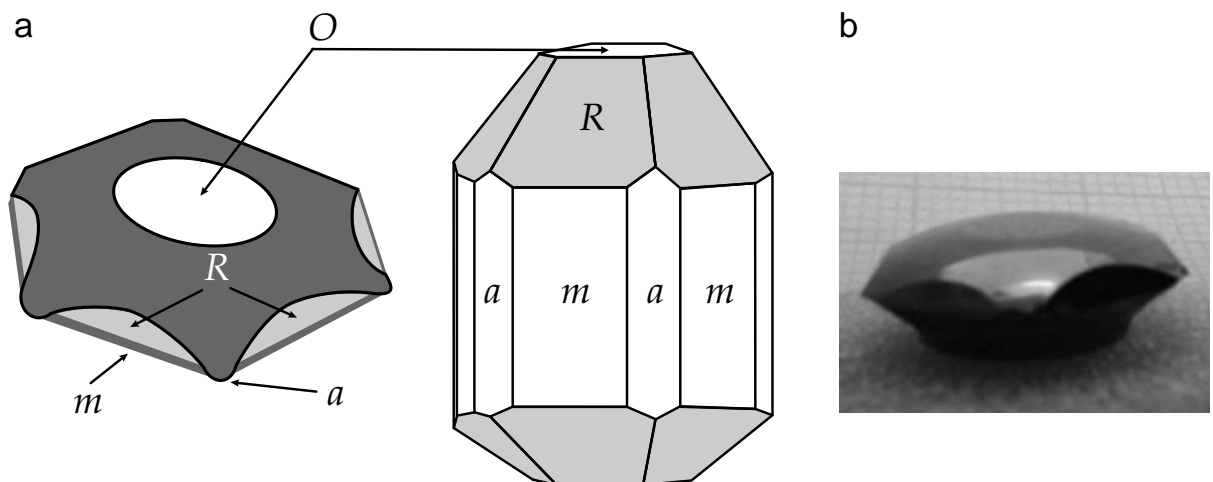


Рис. 64. (а) Облик кристалла SiC, образованный гранями призматического пояса: $m \{10\bar{1}0\}$ и $a \{11\bar{2}0\}$; наклонными гранями R и гранью базиса O (0001). (б) Фотография слитка. Вид сбоку.

4.5.2 Дислокации и микротрубки

Далее описано исследование дефектной структуры, выполненное методами фазово-контрастного и брэгг-дифракционного изображения с привлечением методов оптической и ФЛ-микроскопии. Для начала рассмотрим данные, полученные методом селективного травления. На рис. 65, *a* показана фотография пластины с ориентацией (0001). Ее центральная область очерчена окружностью, а латеральная область покрыта сеткой. Форма края явно указывает на присутствие граней призматического пояса: m и a . Вызывает интерес неоднородный контраст в центре пластины. Кроме того, обращают на себя внимание протяженные дефекты в виде неровных линий, вытянутых вдоль направлений $[\bar{1}2\bar{1}0]$ и $[\bar{2}110]$. По данным ФЛ-микроскопии, в центральной части кристалла сформировались включения паразитных поли типов (данные не показаны). О природе протяженных дефектов речь будет идти ниже.

В данном образце плотность дислокаций и МТ оценивалась по ямкам травления. Для наглядного представления, рентгеновская топограмма была разбита на квадратные ячейки площадью 4 мм². Рассмотрим фрагмент сетки из 6 квадратов A, B, \dots, F в латеральной области образца (рис. 65, *b*). Ясно видно, что в квадратах E и F , расположенных на периферии латеральной

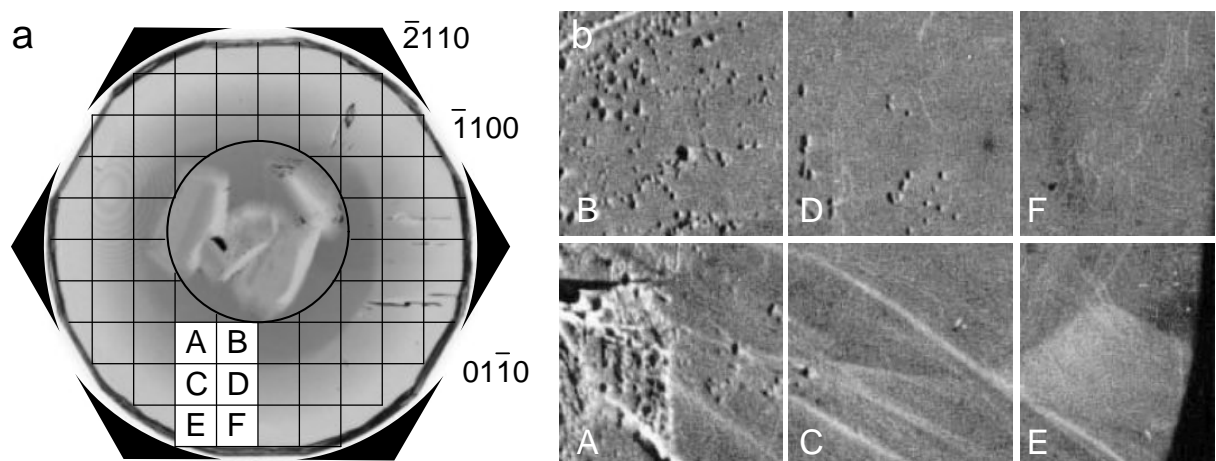


Рис. 65. (*a*) Фотография пластины 6H-SiC с ориентацией (0001). Обозначены грани призмы m $\{\bar{1}100\}$. Центральная область пластины очерчена окружностью; латеральная область покрыта сеткой. (*b*) Изображения ямок травления дислокаций и микротрубок на рентгеновской топограмме. Участки A и B расположены у границы центральной области; C и D – в середине латеральной области; E и F – на периферии латеральной области. Метод Ланга. Излучение $\text{CuK}\alpha$. Отражение $10\bar{1}.10$.

области, ямок нет. Однако ямки появляются в квадратах C и D , то есть в середине латеральной области. Их количество постепенно увеличивается по направлению к центральной области и резко увеличивается у границы между центральной и латеральной областями, то есть в квадратах A и B . Средняя плотность ямок травления равна $1.6 \times 10^3 \text{ см}^{-2}$. Те ямки, которые расположены по краю центральной области, составляют и 91% от этой величины.

Для оценки средней плотности МТ был использован метод фазово-контрастного изображения. Большим достоинством метода является простота, с которой можно оценить плотность МТ отдельно от дислокаций со сплошным ядром. С одной стороны, последние просто нельзя наблюдать этим методом. С другой стороны, проблема различения трубок и других нарушений сплошности решается благодаря специфическим особенностям контраста этих дефектов. Изображения на рис. 66, *a* демонстрируют изменения знака контраста, весьма характерные для микротрубок в отличие от микротрещин или пор другой формы.

Подсчет МТ производился по мере сканирования образца в пучке СИ. Процедуру подсчета иллюстрирует диаграмма на рис. 66, *b*. Схематическое изображение исследуемой пластины SiC разбито на фигуры, пронумерованные или помеченные буквами. Каждая фигура — это карта распределения МТ, составленная из прямоугольников поля зрения детектора. Разные символы использованы для того, чтобы различить принадлежность карт к соседним секторам роста призм: (m) или (a). В частности, карта II, локализованная в секторе грани m ($\bar{1}100$), составлена из 11 прямоугольников площадью 2.2 мм^2 . Карта II содержит 1 микротрубку. Карта A, локализованная в секторе грани a ($\bar{2}110$), имеет площадь 0.17 см^2 . Она содержит 3 микротрубки. И так далее. Результаты подсчета сведены в таблице 6. На площади размером 1.4 см^2 были обнаружены 13 МТ. Таким образом плотность МТ в латеральной части исследованного образца равна 9 см^{-2} .

Обобщая результаты, можно заключить, что плотность дислокаций и МТ имеет максимальную величину в центральной части кристалла, расположенной над затравкой, и она быстро уменьшается по направлению к периферии латеральной области. Заметим, что публикация [55], в которой метод свободного распространения был предложен и экспериментально

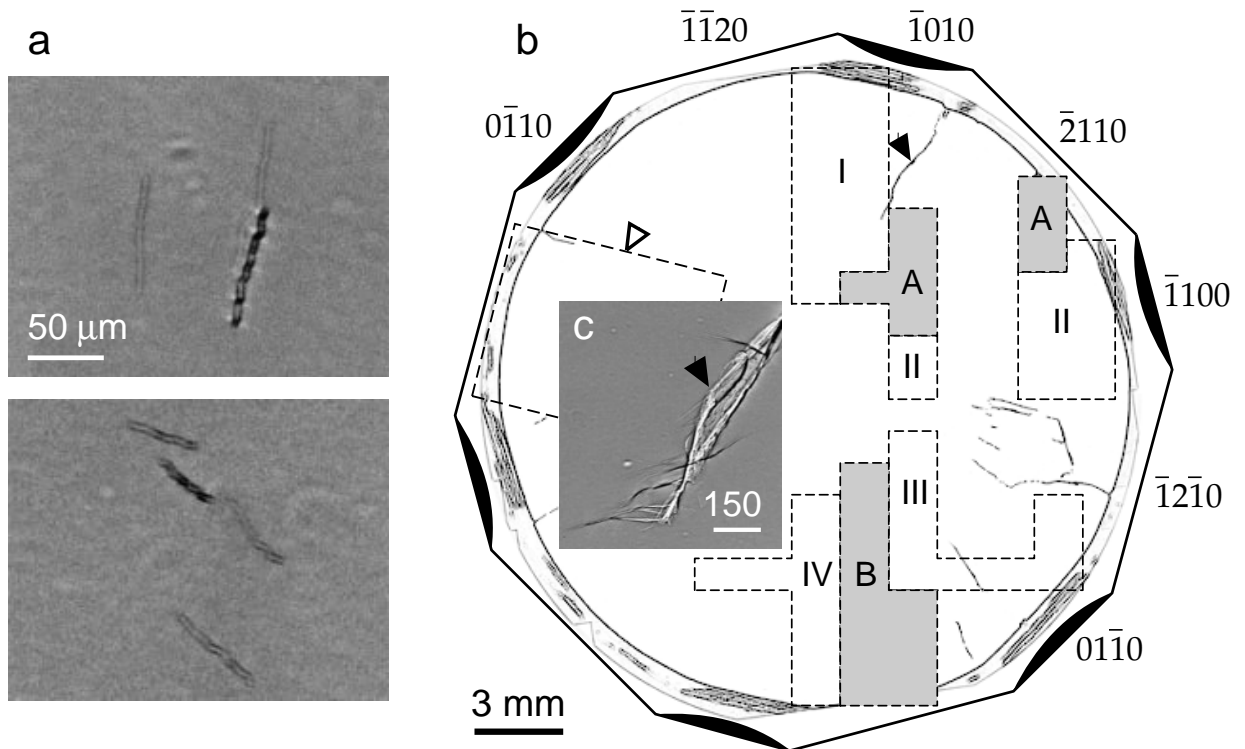


Рис. 66. Фазово-контрастные изображения микротрубок и диаграмма, поясняющая подсчет плотности микротрубок отдельно от дислокаций. (а) Микротрубки в пластине SiC с ориентацией (0001). Изображения отличаются углом поворота образца. Оси микротрубок составляют малые углы с направлением пучка СИ. (б) Схематическое изображение образца, на котором обозначены грани призматического пояса. Фигуры I–IV, A и B очерчивают площадь, внутри которой производился подсчет микротрубок. На вставке (с) показано изображение щелевидной поры (масштаб 150 мкм). Белой стрелкой отмечено местоположение рентгеновской топограммы. Объяснения в тексте.

Таблица 6. Подсчет плотности микротрубок в латеральной области кристалла SiC, полученного методом свободного распространения

Но проекции	Площадь, см ²	Количество микротрубок
I	0.32	3
II	0.24	1
III	0.22	0
IV	0.19	4
A	0.17	3
B	0.26	2
Итого	1.4	13

продемонстрирован, сообщала другие цифры. Плотность дислокаций уже в середине латеральной области не превышала 10 см^{-2} , а дислокационные МТ не наблюдались. Тот факт, что плотность МТ оказалась примерно на порядок выше, можно объяснить присутствием включений паразитных политипов, зарождение которых вызвало снижение структурного качества образцов.

На диаграмме заметно, что некоторые карты распределения МТ не строго ограничены пределами секторов. Например, карта I смещена из сектора m ($\bar{1}010$) и занимает часть сектора a ($\bar{1}\bar{1}20$). Рядом с границей области I обнаруживается крупный дефект, вытянутый вдоль направления $[\bar{2}110]$. Этот дефект обозначен черной стрелкой на рис. 66, *b*. Ввиду его вероятного влияния на распределение МТ, он был исключен за счет переноса границ области. Другой подобный дефект присутствует в секторе a -границ ($\bar{1}2\bar{1}0$). Те же дефекты обнаруживаются и на a -границах образца, фотография которого дана на рис. 65, *a*.

Фазово-контрастное изображение участка, отмеченного черной стрелкой, представлено на поле диаграммы (рис. 66, *c*). На люминесцентном изображении кристалла-сцинтиллятора, сфокусированном на детектор посредством короткофокусного объектива, хорошо видны детали, неразличимые при малом увеличении. Стало ясно, что это не линейный, а плоский дефект, представляющий собой щелевидную пору. В нижней части картины щелевидную пору пересекают короткие линии черно-белого контраста. В них легко распознать МТ, которые выглядят так, как будто они „выпущены“ из поры. Правильная интерпретация состоит в том, что МТ наклоняются по направлению к поре и поглощаются ею.

4.5.3 Границы разориентации. Щелевидные поры

Дополнительная информация была получена методом рентгеновской топографии. При регистрации топограмм в сочетании с записью фазово-контрастных изображений замена детектора практически не сказывается на положении пучка на образце. Поэтому не возникает существенных трудностей с тем, чтобы определить какая часть кристалла изображается на снимках обоих типов. В частности, во время регистрации рентгеновского снимка Лауэ (рис. 67, *a*) пучок СИ находился в области, отмеченной белой стрелкой и очерченной пунктиром на диаграмме (рис. 66, *b*), то есть между щелевидными порами.

В результате индирования интенсивных отражений, выполненного с помощью компьютерной программы и данных для структуры $6H-SiC$, на пленке были выбраны лауэтопограммы в отражениях $\{20\bar{2}1\}$. Они располагались вблизи центра снимка Лауэ, поэтому давали почти

неискаженные изображения дефектов. Одна топограмма, увеличенная с помощью оптического микроскопа, показана на рис. 67, *b*. Отметим, что она имеет контраст негатива: наибольшей интенсивности рассеяния отвечает черный цвет. На топограммах, полученных в этой и других частях образца, изображения отдельных дислокаций не разрешаются. В то же время контраст фона весьма неоднородный. По-видимому, статистические флуктуации высокой локальной плотности дислокаций вызывают изменения интенсивности интегрального отражения и приводят к неоднородному фону картины. Это указывает на то, что исследуемый кристалл несовершенный [254].

На этом фоне можно наблюдать четкие линии темного (1, 2) или светлого (3) контраста (рис. 67, *b*). Изменение контраста этих линий в разных отражениях позволяет охарактеризовать его как ориентационный контраст границ между разориентированными областями. Следует подчеркнуть, что в белом СИ сильный контраст возникает только на границах. Прилегающие к ним области кристалла не выходят из отражения, потому что каждая область настроена на отражение своего участка спектра.

Граница разориентации, обозначенная цифрой 3 (рис. 67, *b*), представлена на рис. 68 в двух разных отражениях: $20\bar{2}1$ и $4\bar{1}\bar{3}3$. Блоки сверху и снизу от границы сформировали свои отражения. Дифрагированные блоками лучи

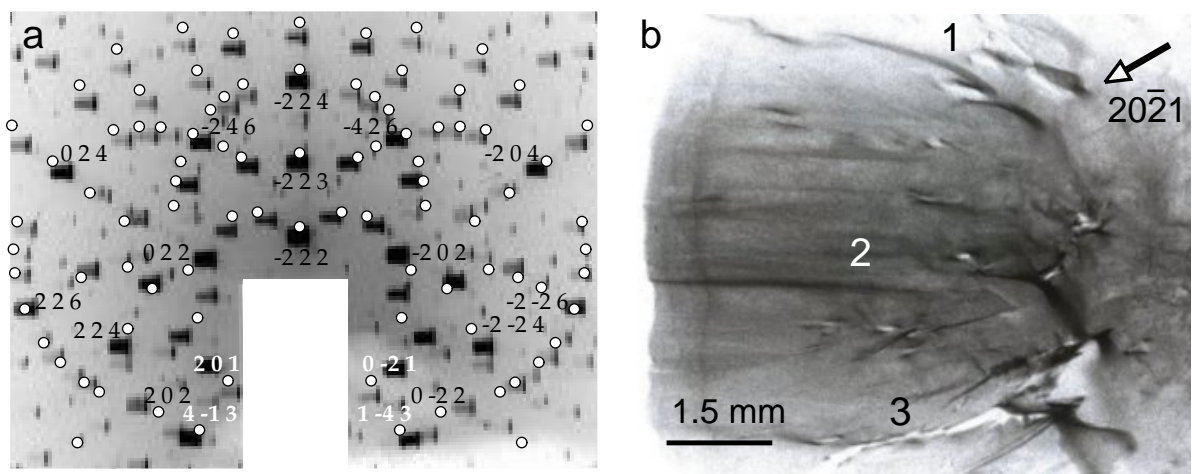


Рис. 67. (а) Лауэтопограмма пластины 6H-SiC (0001). Вертикальное направление: $[\bar{1}120]$. Нормаль к поверхности [0001] составляет 3° с направлением пучка СИ. Расстояние между образцом и пленкой 145 мм. Пленка Kodak SR-45 (b) Топограмма в отражении $20\bar{2}1$, увеличенная через оптический микроскоп. Дефектные границы между разориентированными субзернами обозначены цифрами 1, 2 и 3.

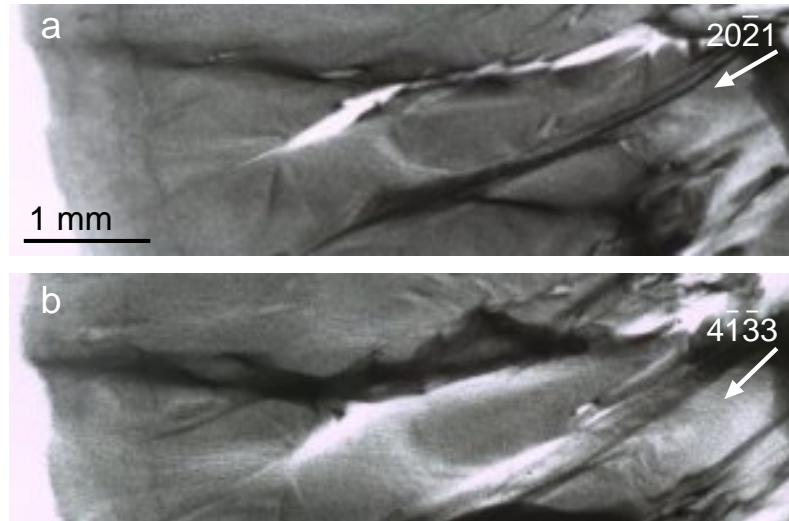


Рис. 68. Фрагменты топограмм, полученных в отражениях $20\bar{2}1$ (a) и $4\bar{1}33$ (b). Граница разориентации, обозначенная цифрой 3 на рис. 67, изменяет контраст в зависимости от направления вектора дифракции.

распространяются вдоль разных направлений. В результате перехода от отражения $20\bar{2}1$ (рис. 68, a) к отражению $4\bar{1}33$ (рис. 68, b) преимущественно белый цвет границы 3 стал темнее. В то же время для соседней снизу границы контраст, наоборот, стал светлее. При этом разориентация решетки внутри блоков изменяется плавно. Результирующий контраст сложный и не поддается интерпретации.

Для установления связи между границами разориентации и щелевидными порами рассмотрим экспериментальные данные, полученные при исследовании образцов, ориентированных параллельно граням призм. На картинах внутреннего строения образцов, обнаруживаемых методом фазово-контрастного изображения, доминируют два типа дефектов — МТ и щелевидные поры. При сопоставлении фазово-контрастных изображений выявлено явное несходство в формировании дефектной структуры в секторах $\{\bar{1}010\}$ (m) и $\{\bar{2}110\}$ (a) граней. На изображениях образцов с m -ориентацией (рис. 69, a) микротрубки наблюдаются редко. В некоторых кристаллах хорошо видны крупные поры неправильной формы вблизи верхнего края слитка, которые можно заметить также и на оптических фотографиях. Это фракции перекристаллизованного материала, появившиеся в результате самопроизвольного роста у задней стороны затравки. На рис. 69, a–b они расположены за пределами прямоугольника, нарисованного белым пунктиром, который охватывает

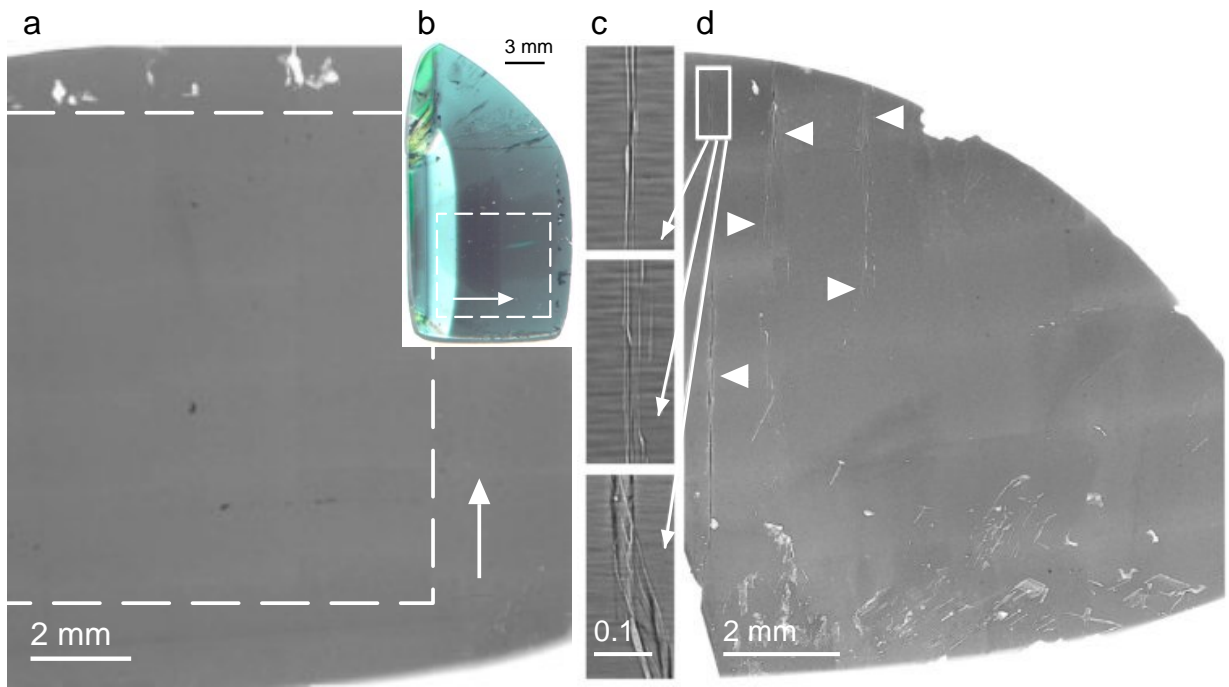


Рис. 69. Изображения пластин, ориентированных параллельно граням призматического пояса. (а) Фазово-контрастное изображение образца с ориентацией $m \{1010\}$. Направление роста показано стрелкой, направленной снизу вверх. (b) Оптическая фотография этого образца. Изображение повернуто на 90° по часовой стрелке. (c) Увеличенные фазово-контрастные изображения пучков микротрубок в образце с ориентацией $a \{2110\}$. (d) Изображение a -грани. Стрелками отмечены местоположения пучков микротрубок.

политипно-однородный материал, не поврежденный формированием микро- и макропор.

Обратившись для сравнения к a -граням, мы обнаруживаем другую закономерность. Образцы, ориентированные параллельно a -граням, всегда содержат микротрубки и более крупные тручатые поры. На рис. 69, d приведена половина изображения целого образца. Особый интерес вызывают дефекты, распределенные по вертикали вдоль направлений $[0001]$. Слева от изображения образца представлены три увеличенных фрагмента (рис. 69, c), расположенные внутри рамки, очерченной белой линией в верхней части картины (рис. 69, d). Можно рассмотреть строение вертикально-ориентированных дефектов. Они состоят из касающихся друг друга или переплетенных „супертрубок“ — тручатых пор диаметром приблизительно 10 мкм. В нижней части картины (рис. 69, d), прилегающей к кристаллу-затравке, находится политипно-неоднородный материал. Многочисленные поры окружают включения паразитных политипов.

Сопоставление топограмм пластин, ориентированных параллельно грани

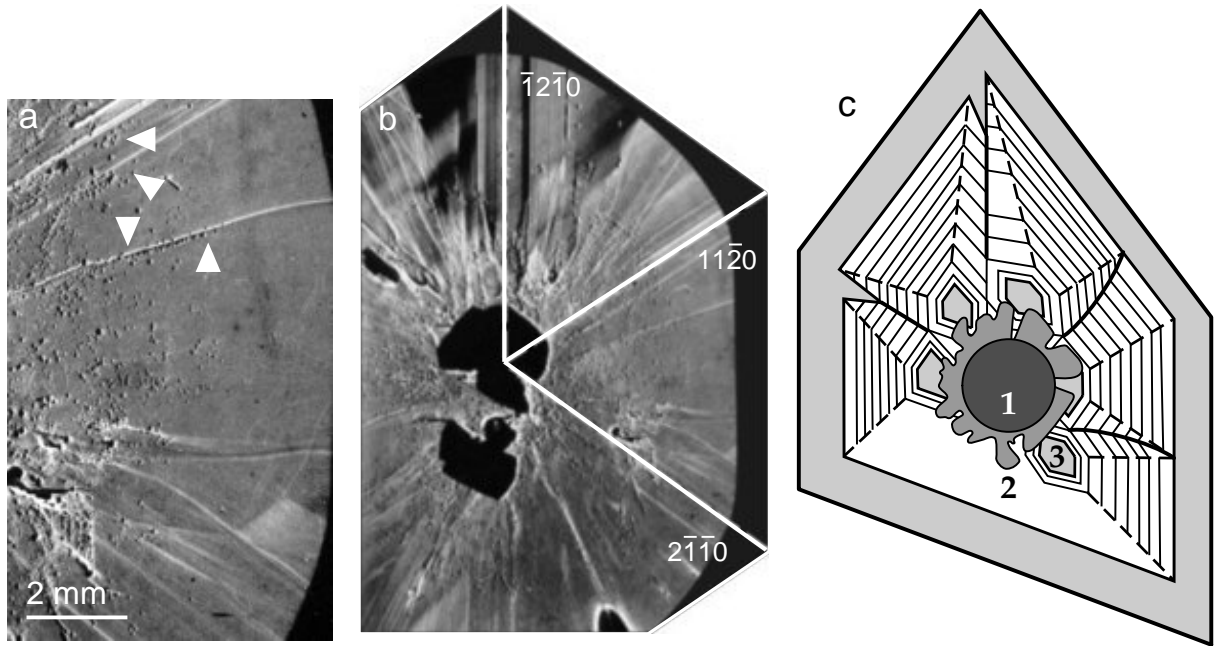


Рис. 70. (a) Рентгенотопографическое изображение границ разориентации в пластине SiC(0001). Стрелками отмечены скопления ямок травления. (b) Линии указывают преимущественные направления границ разориентации. Области нулевого контраста в центре пластины соответствуют включениям инородных политипов. Метод Ланга. Излучение $\text{CuK}\alpha$. Отражение $10\bar{1}.10$. Увеличение $5\times$. (c) Идеализированная схема построения габитуса гексагонального кристалла, на которой формирование плоских дефектов представлено как результат срастания разориентированных кристаллитов. 1 – кристалл-затравка; 2 – центры кристаллизации; 3 – кристаллиты.

базиса, и фазово-контрастных изображений a -граней дает основания предполагать о существовании плоских дефектных границ. С одной стороны, на топограммах можно наблюдать повышение плотности ямок травления вблизи границ разориентации, преимущественно параллельных направлениям $\langle 11\bar{2}0 \rangle$. С другой стороны, фазово-контрастные изображения выявляют области на a -гранях (локализованные вдоль оси c), в которых МТ собираются в пучки. Объяснить описанные особенности можно так, что плоские дефекты параллельны обоим типам направлений. Изображения границ в проекции на плоскость (0001) демонстрирует топограмма на рис. 70, a , на которой отмечены скопления ямок травления в секторе грани $(11\bar{2}0)$. На соседнем снимке направления проекций границ в некоторых других секторах прочерчены белыми линиями (рис. 70, b). Топограммы в геометриях Брэгга и Лауэ подтверждают, что границы не локализованы в объеме, а распространяются в направлении вершины слитка.

Представляется вероятным, что свободное распространение кристалла SiC

начинается с зарождения центров кристаллизации. Разрастание от цилиндрической затравки можно схематически представить как трехстадийный процесс (рис. 70, *c*): (i) зарождение центров кристаллизации на поверхности затравки; (ii) формирование разориентированных кристаллитов и (iii) срастание кристаллитов с образованием плоских границ преимущественно параллельных направлениям $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, ввиду более высокой скорости роста в этих направлениях [255].

В результате процессов группирования МТ должно происходить слияние мелких МТ и формирование „супертрубок“. При этом наступает эффективная релаксация сдвиговых напряжений решетки, которая является движущей силой адаптивного поведения МТ в условиях формирования границ. Далее можно предположить, что трансформация МТ в „супертрубки“ и строгая локализация последних вдоль дефектных границ являются факторами, определяющими уменьшение средней плотности МТ в объеме кристалла между границами. Контактные реакции слияния МТ следует рассматривать с учетом их дислокационной природы. При контактном взаимодействии две трубки всегда притягивают друг друга из-за наличия свободных поверхностей, независимо от знаков векторов Бюргерса. Эта сила изменяется с расстоянием приблизительно как $1/r^3$. С другой стороны, дислокации внутри трубок отталкиваются или притягиваются в зависимости от знаков векторов Бюргерса, и эти силы изменяются с расстоянием как $1/r$. Очевидно, что МТ с векторами Бюргерса противоположных знаков притягивают друг друга благодаря обоим типам взаимодействия. В то же время однознаковые МТ будут взаимодействовать более сложным образом. Тем не менее, можно ожидать, что существует некоторое равновесное расстояние, когда сила отталкивания, обусловленная дальнедействующим взаимодействием $1/r$, равна очень короткодействующей силе притяжения $1/r^3$. Без учета внешнего напряжения сдвига это расстояние довольно мало, и оно порядка среднего радиуса взаимодействующих МТ. Слияние наверняка происходит, если расстояние становится еще меньше. На экспериментальных изображениях видно, что размеры зазоров на стыке трубок в пучках намного меньше их диаметров. Можно утверждать, что реакции слияния должны иметь место.

4.5.4 Обсуждение экспериментальных результатов

Для объяснения вышеописанных наблюдений можно предложить две категории дефектов структуры, весьма различных как по своему происхождению, так и по местоположению в слитке. Первая категория включает дислокации и дислокационные МТ. Часть этих дефектов наследуется из затравки, и они развиваются в центральной области растущего кристалла. Кроме того, дефекты могут вновь появиться в процессе роста в условиях политипной неоднородности.

Ко второй категории относятся плоские щелевидные поры, которые образуются в латеральной части слитков SiC. Естественно предположить, что поры зарождаются на некоторых ранее существовавших плоских дефектах, характерных для сублимационного роста объемных кристаллов SiC. Хорошо известно, что рост кристалла в направлении $[0001]$ в условиях осевого градиента температуры сопровождается образованием плоских дефектов типа малоугловых границ и полос скольжения из краевых дислокаций вдоль направлений $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ [224, 256]. Эти дефекты расположены на периферии слитков. Они вызваны развитием термонапряжений в процессе роста и остывания кристалла.

Какова бы ни была природа плоских дефектов, для их трансформации в поры необходимо выполнение следующих условий. Они должны поглотить большое количество вакансий или привлечь некоторые „элементарные“ поры, уже существующие вокруг них. Обсудим обе эти возможности. Во-первых, сформировавшиеся плоские дефекты могут служить в качестве путей эффективной и быстрой диффузии вакансий от фронта роста в объем растущих кристаллов, как показано на рис. 71, где вакансии изображены белыми шариками. На рисунке плоские дефекты представлены тремя возможными типами: малоугловыми границами, полосами скольжения и большеугловыми границами зерен. К сожалению, в рассматриваемом нами случае наблюдения над структурой плоских границ весьма недостаточны в связи с ограниченными возможностями используемых методов. Поэтому нет оснований, чтобы решить вопрос о типе, к которому они принадлежат. В дальнейшем, не делая различий между типами плоских дефектов, будем

считать их границами субзерен.

Можно представить два сценария, вероятность осуществления которых зависит от скорости роста кристалла. Если скорость относительно высокая, то вновь образовавшиеся вакансии свободно мигрируют вдоль ядер дислокаций и вдоль плоскостей границ субзерен без коагуляции (рис. 71, *a-c*). Однако, если она относительно низкая, то вакансии имеют достаточно времени для коагуляции и образования щелевидных пор, растущих вместе с кристаллом (рис. 71, *d-f*). Для того, чтобы решить, какой сценарий является более реалистичным, можно оценить среднюю длину свободного пробега вакансии, скажем, в течение одного часа, и сравнить ее со скоростью роста исследованных кристаллов. Средняя длина свободного пробега вакансии определяется формулой: $r \sim (D^*t)^{1/2}$, где D^* – эффективный коэффициент диффузии вакансий вдоль плоских дефектов, сформировавшихся в объеме кристалла, и t – характерное время диффузионного процесса. В первом

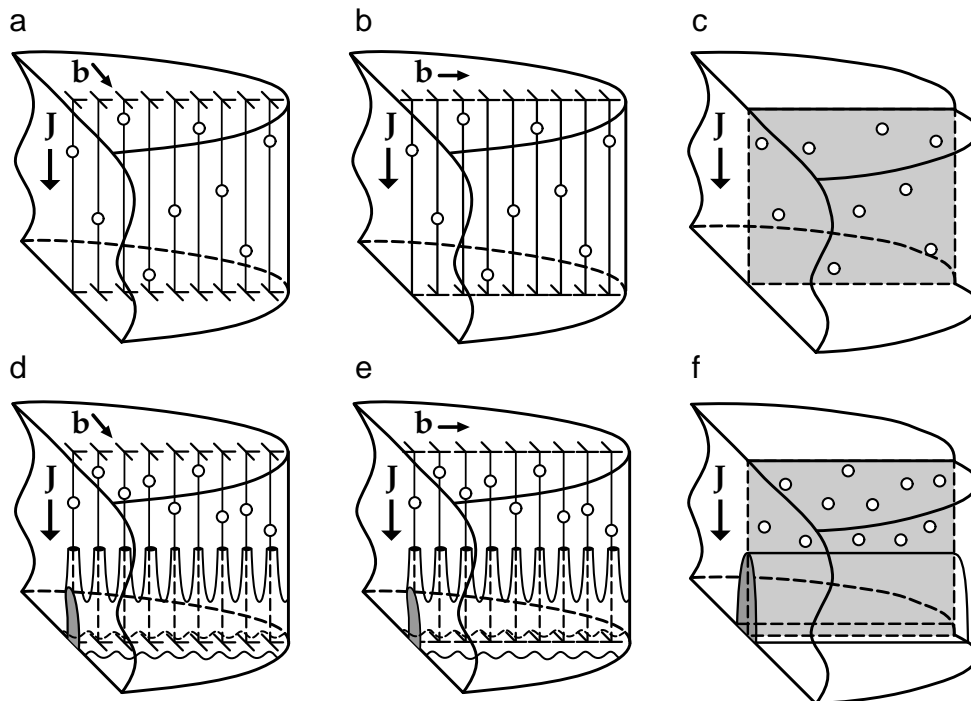


Рис. 71. Схема для понимания процессов ускоренной диффузии вакансий вдоль ядер дислокаций, образующих плоские дефекты типа малоугловых границ (*a, d*), полос скольжения (*b, e*) и большеугловых границ зерен (*c, f*) в монокристаллах SiC, растущих с высокой (*a-c*) и низкой (*d-f*) скоростью. В последнем случае вакансии имеют достаточно времени для коагуляции и образования щелевидных пор вдоль ранее сформировавшихся плоских дефектов. Здесь \mathbf{b} – вектор Бюргерса дислокации, J – поток вакансий от фронта роста в объем растущего кристалла.

приближении предположим, что D^* на один порядок величины выше, чем коэффициент объемной диффузии вакансий D : $D^* \sim 10D$, и воспользуемся экспериментальными данными для самодиффузии углерода в SiC при температуре $T = 2300$ К. Коэффициент самодиффузии углерода приблизительно равен $D_c \sim 10^{-11}$ см² с⁻¹ [257, 258], и энергия образования вакансии углерода составляет $E_{Cv}^f \sim 2.92$ эВ [258], что позволяет оценить коэффициент диффузии вакансий углерода как $D_{Cv} \sim D_c \exp(E_{Cv}^f/kT) \sim 3 \times 10^{-5}$ см² с⁻¹, где k – постоянная Больцмана. Затем $D_{Cv}^* \sim 10D_{Cv} \sim 3 \times 10^{-4}$ см² с⁻¹ дает $r \sim (D_{Cv}^* t)^{1/2} \sim 1$ см для $t = 1$ час. Таким образом, характерная скорость диффузии вакансий ~ 1 см час⁻¹ значительно превышает типичную скорость роста исследованных кристаллов, которая составляет величину между 0.1 и 1.5 мм час⁻¹. Поэтому вполне вероятно, что вакансии имеют достаточно времени для коагуляции и формирования щелевидных пор, как показано на рис. 71, *d-f*.

Вторая возможность формирования щелевидных пор состоит в привлечении МТ, уже существующих в непосредственной близости от плоских дефектов. Будем исходить из того, что общей тенденцией в поведении МТ является притяжение к плоским дефектам и формирование скоплений. С физической точки зрения, притяжение МТ к плоским дефектам имеет несколько составляющих. Во-первых, притяжение вызвано упругим взаимодействием между дефектами и свободными поверхностями МТ. В самом деле, хорошо известно, что дислокации, которые являются элементарными составляющими плоских дефектов, всегда притягиваются к порам [259]. Под дислокациями здесь понимаются те, которые имеют сплошное ядро. Они образуют либо малоугловые границы типа наклона и кручения, либо полосы скольжения. Асимптотика и величина этой силы (силы изображения), зависят от ориентации и распределения дислокаций в пределах плоских дефектов; однако она всегда остается силой притяжения. Во-вторых, МТ могут притягиваться к плоским дефектам из-за упругого взаимодействия между винтовой супердислокацией внутри трубки и винтовой дислокацией противоположного знака, которая входит в состав малоугловой границы. Величина сил взаимодействия такого типа намного выше, чем в предыдущем случае сил изображения. Однако только часть всех МТ может быть притянута к соответствующим границам субзерен, в то время

как оставшаяся часть МТ с винтовыми супердислокациями того же знака, что и дислокации, составляющие границы, должна испытывать отталкивание.

В-третьих, граница субзерна может оказаться просто препятствиями на пути МТ, упруго взаимодействующих между собой, как схематически показано на рис. 72. Микротрубки с векторами Бюргерса разных знаков могут упруго взаимодействовать через границу, стремясь достичь друг друга (рис. 72, *a*). Мигрируя, они встречаются с границей и захватываются ею (рис. 72, *b*). Таким образом, МТ накапливаются на границе и превращаются в поры, вытянутые вдоль плоскости границы (рис. 72, *c*), а дислокации внутри трубок (в обсуждаемом простейшем случае) аннигилируют. Когда поры, расположенные на границе, встречаются друг с другом, они сливаются, образуя щелевидную пору вдоль малоугловой границы. Все три вышеупомянутых составляющих притяжения микротрубок к границам и агломерации их вдоль границ могут привести к образованию щелевидных пор. Следует отметить, что фазово-контрастные изображения прямо показывают роль МТ в формировании щелевидных пор. Эта роль становится вполне очевидной из картины на рис. 66, где некоторые МТ выглядят как „хвосты“, выпущенные из поры.

Как правило, оба механизма — диффузия вакансий и притяжение МТ к границам — могут действовать одновременно и приводить к образованию щелевидных пор на плоских дефектах в растущих кристаллах SiC. Этот вывод

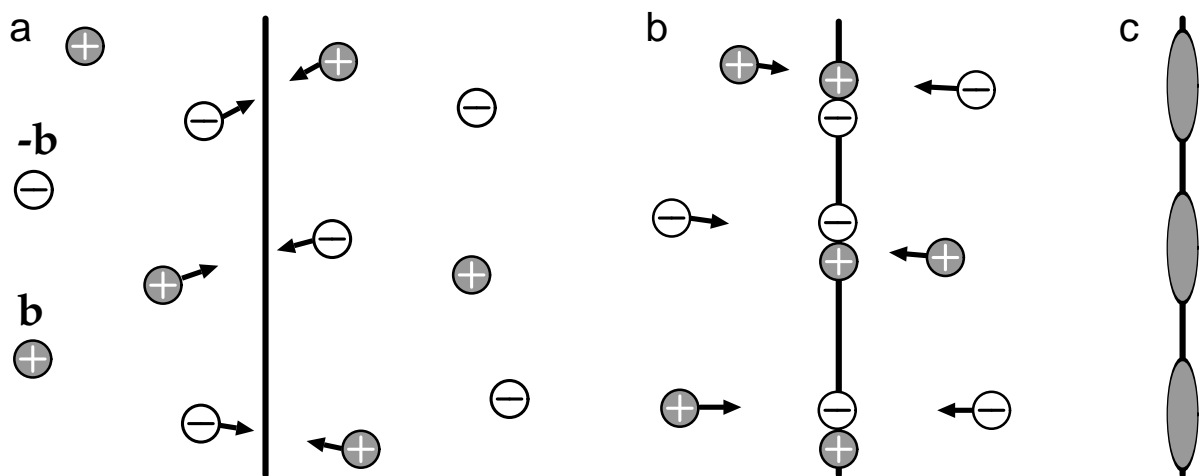


Рис. 72. Формирование пор щелевидной формы вдоль плоских дефектов типа границ субзерен. Микротрубки с положительными и отрицательными знаками вектора Бюргерса \mathbf{b} , которые находятся ближе к границе, притягиваются друг к другу и к границе (*a*), захватываются границей (*b*) и в конечном итоге превращаются в поры (*c*), слияние которых формирует щелевидную пору. Окружающая область очищается от микротрубок.

следует рассматривать как предварительный из-за отсутствия достаточных экспериментальных данных в пользу первого или второго механизма. Особо отметим, что в боковую часть слитков дефекты из кристалла-затравки не распространяются. Причиной увеличения плотности МТ за пределами контура затравки являются включения инородных политипов. МТ зарождаются либо на границах включений из винтовых супердислокаций, либо в результате зарастания пор, сформировавшихся вдоль этих границ.

В кристаллах, имеющих секториальное строение, можно выделить практически однородные области, если знать закономерности их формирования, не нарушаемые вмешательством случайных внешних условий [260]. В частности, в исследованных образцах качество граней призмы $m \{1010\}$ явно выше, чем в среднем по кристаллу. Что касается пор в латеральной области слитков, то есть основания считать, что они зарастают, если аксиальный рост продолжается достаточно долго после стабилизации основного политипа.

Когда кристалл SiC разрастается латерально в условиях теплового поля, стабильность параметров теплового поля является принципиально важным фактором для получения материала высокого структурного совершенства. Контроль параметров играет основную роль в подавлении включений политипов на стадии их зарождения.

4.6 Выводы

Зарождение включений инородных политипов в растущем кристалле SiC сопровождается формированием пор из дислокационных микроотрубок. Последние притягиваются к границам включения под влиянием поля упругой деформации включения, мигрируют по направлению к границе и, достигая ее, снимают напряжения несоответствия, создаваемые включением. Если пластические искажения достаточно велики, то происходит накопление микроотрубок. Пory зарождаются в результате объединения микроотрубок между собой. Пory растут, до тех пор, пока включение с порой не прекратит притягивать и поглощать новые микроотрубки.

Заращение включений приводит к полному закрытию пор. В условиях устойчивого роста основного политипа в ансамбле микроотрубок происходят процессы самоорганизации. Дислокационные микроотрубки упруго взаимодействуют и вступают в реакции друг с другом, а также с дислокациями со сплошным ядром. В результате некоторые из них уменьшают свои векторы Бюргерса или аннигилируют и затем зарастают. Постепенное заращение микроотрубок приводит к уменьшению их плотности.

В условиях теплового поля кристалл SiC растет в направлении нормали к грани базиса и в то же время свободно распространяется в боковом направлении. На начальной стадии процесса роста слиток приобретает габитус секториально построенного гексагонального кристалла. Подавление включений инородных политипов дает достаточное условие для снижения плотности дислокаций и микроотрубок за пределами сектора базисной грани. На следующей стадии превалирует нормальный рост, в течение которого низкая плотность дефектов сохраняется при условии, что политипная однородность не нарушается.

5. Карбид кремния как подложка для выращивания кристаллов нитрида алюминия

Аннотация.

Твердотельные оптоэлектронные устройства, излучающие в ультрафиолетовом диапазоне, используют в медицине, биологии и технике. Нитриды металлов III группы и твердые растворы на их основе способны обеспечить эффективную работу таких устройств. Значительное снижение эффективности происходит вследствие образования дислокаций, вызванных тем, что пленки нитрида галлия (GaN) и твердых растворов AlGaN выращивают на инородных для них подложках: Al₂O₃, Si и SiC. Для снижения плотности дислокаций пленки осаждают на профилированные подложки-темплейты [261, 262], на неполярные [263, 264] или вицинальные грани инородных подложек (см., например, обзор [265]). В частности, буферный слой SiC на подложке Si, синтезированный методом замещения атомов в кристаллической решетке кремния, обеспечивает рост монокристаллических слоев GaN, несмотря на огромное несоответствие параметров решеток [266–271].

Подложки из кристаллического карбида кремния не могут обеспечить получение качественных эпитаксиальных слоев III-нитридов из-за большого несоответствия параметров решетки, различия коэффициентов термического расширения и химической несовместимости. Тем не менее они обладают такими полезными свойствами, которые позволяют использовать их для получения объемных монокристаллов нитрида алюминия (AlN). Последние являются лучшим (и в настоящее время единственным) материалом для собственных подложек, соответствующих промышленным стандартам размера и структурного качества. Дислокационные процессы, происходящие при выращивании AlN методом сублимации на подложках SiC определяют совершенство получаемых кристаллов.

В данной главе описано исследование дислокационной структуры вблизи интерфейса AlN-SiC высокоразрешающими рентгеновскими методами. Экспериментальные результаты обсуждаются в сравнении с хорошо изученной проблемой дефектообразования в пленках GaN. При отсутствии тонких сплошных (нерастресканных) пленок AlN, которых просто нет, были исследованы специальные образцы, полученные по оригинальной технологии, позволяющей полностью предотвратить растрескивание AlN путем испарения подложек SiC.

5.1 Структурные свойства GaN и AlN на подложках SiC

Как показывают результаты многочисленных исследований, в кристаллических слоях GaN, выращиваемых на инородных для них подложках SiC, Al₂O₃ и Si, образуются дислокации, плотность которых (практически независимо от типа подложки) достигает $10^8 - 10^{10} \text{ см}^{-2}$ (см., например, [272–274]). Дислокации прорастают сквозь слои от интерфейса до поверхности вдоль нормали к поверхности [275]. Искажения кристаллической решетки, вызванные распределением дислокаций столь высокой плотности, оказывают заметное влияние на формирование кривых рентгеновского дифракционного отражения. Методом высокоразрешающей дифрактометрии установлено, что кривые симметричных брэгговских отражений относительно узкие, но кривые квазисимметричных отражений от плоскостей, почти перпендикулярных поверхности образца, в несколько раз шире [273, 275, 276]. Это означает, что плотность винтовых дислокаций существенно ниже плотности краевых дислокаций, потому что симметричные отражения подвержены влиянию только винтовых дислокаций с вектором Бюргера $\mathbf{b} = [0001]$. Уширение квазисимметричных отражений происходит под влиянием прорастающих дислокаций обоих типов. По данным просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), различие в плотности краевых и винтовых дислокаций составляет один–два порядка.

Несоответствие параметров между кристаллическими решетками AlN и SiC (1.3%) заметно меньше, чем между GaN и SiC (3.5%). Плотность прорастающих дислокаций в толстых слоях AlN составляет $\sim 10^5 \text{ см}^{-2}$ [277, 278], что на 4–5 порядков ниже, чем в пленках GaN [272–276]. При этом толщина пленок GaN не превышает один микрометр, а толщина слоев AlN больше 3 мм.

Тонкие пленки AlN на относительно толстых подложках SiC растрескиваются при остывании по причине большого различия коэффициентов термического расширения AlN и SiC. Существенное улучшение сплошности наступает при толщине слоя $h \geq 3 \text{ мм}$. По литературным данным, кривые дифракционного отражения сужаются по мере увеличения толщины [277–279], и плотность прорастающих дислокаций уменьшается в том же направлении — от 10^6 см^{-2} в начале роста до $7 \times 10^4 \text{ см}^{-2}$ в конце. Это особенно заметно для слитков

высотой ≥ 10 мм [277].

В отличие от пленок GaN, для которых типичен островковый рост на ино-родных подложках, кристаллы AlN на подложках SiC могут формироваться тремя различными модификациями роста: трехмерным островковым, квази-слоевым и слоисто-спиральным [278, 280]. Дислокационная структура пленок GaN описана достаточно полно. По общему мнению, характер распределе-ния дислокаций обусловлен трехмерным островковым механизмом роста этих пленок (см., например, [281]). Механизм роста кристаллов AlN видоизменяет-ся в зависимости от полярности подложки. Для кристаллов, выращенных на $(000\bar{1})$ С-границы SiC наблюдались почти одинаковые по ширине двухкристаль-ные кривые симметричного (0002) и асимметричного $(10\bar{1}2)$ отражений [280]. В то же время для AlN на Si-границы SiC пики асимметричных отражений $(10\bar{1}3)$ и $(10\bar{1}9)$ были вдвое шире пика отражения (0002) [277, 278]. Не только меха-низм роста, но и тип дефектной структуры в слоях AlN соотносится с поляр-ностью подложки SiC.

Более узкие, по сравнению с GaN, пики асимметричных отражений и пониженная плотность прорастающих дислокаций вселяют уверенность в том, что типы дислокационных структур, свойственных AlN и GaN, существенно различаются. При этом дислокационная структура слоев AlN формируется поэтапно, и ранние стадии ее формирования оказывают большое влияние на качество полученных кристаллов. Для суждения о механизме релаксации напряжений несоответствия вблизи интерфейса нужны тонкие пленки AlN, потому что в толстых слоях вклад интерфейса смешан с рассеянием от объема кристалла. Однако при остывании тонкопленочных структур AlN/SiC растрескивание начинается на интерфейсе, и рентгеновские отражения от пленок всегда уширены под влиянием трещин.

По нашим наблюдениям в структурах с толщинами слоя AlN и подложки SiC соответственно h_2 и h_1 трещины появляются всегда, если $h_2/h_1 \sim 1-3$. Теоретическая оценка показывает, что критическое значение отношения h_2/h_1 , начиная с которого растрескивание будет подавлено, составляет $h_2/h_1 \approx 15$. Соответствующий пример дает рис. 73, который показывает трещины в структуре AlN/SiC ($h_2/h_1 \approx 1$) в поперечном (*a*) и плоском (*b*) сечениях образца. На изображении поперечного среза хорошо видно, что трещины

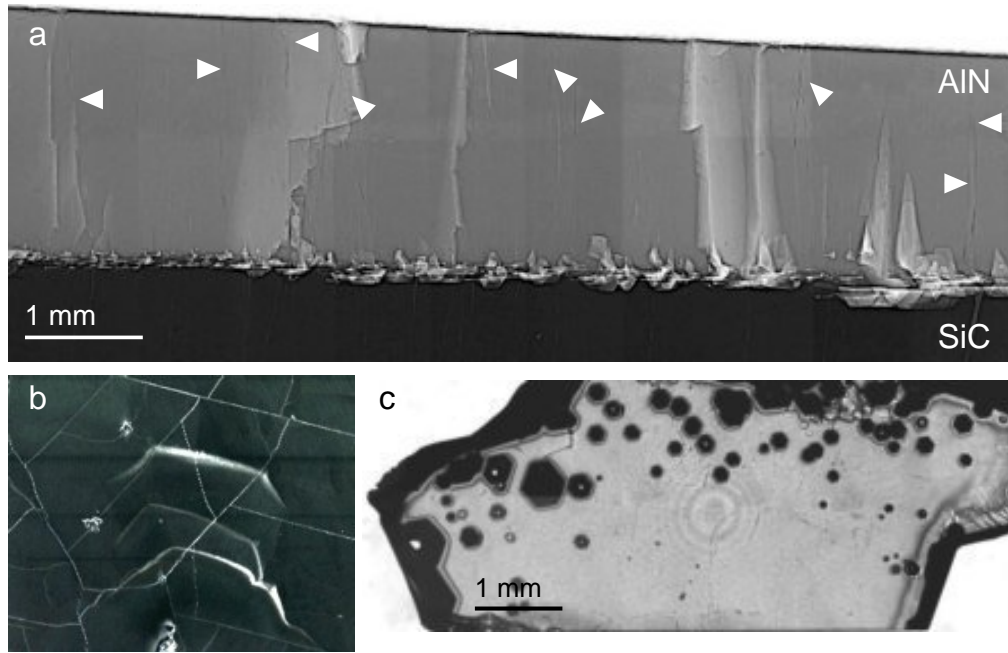


Рис. 73. (a) Рентгеновское фазово-контрастное изображение поперечного среза структуры AlN/SiC. Белыми стрелками обозначены некоторые места локализации трещин. (b) Изображение структуры AlN/SiC. Вид сверху. Метод СЭМ. Поле зрения: 2 мм. (c) Оптическая микрофотография в отраженном свете от слоя AlN с испаренной подложкой. Темные фигуры представляют собой поры. Толщина слоя 0.8 мм.

распространяются от интерфейса в сторону поверхности слоя. Отдельные трещины, достигшие поверхности, отмечены стрелками на изображении. Чем толще слой, тем меньше трещин достигают его поверхности. Плоское сечение тонкой пленки, перпендикулярное направлению роста $[0001]$, иллюстрирует изображение, полученное методом СЭМ. Плотность трещин составляет величину $1\text{--}2\text{ мм}^{-2}$, довольно типичную для отношения толщин $h_2/h_1 \approx 1$.

Вышеописанные результаты дают основания считать, что вопрос о дефектообразовании в AlN/SiC продолжает оставаться не ясным. Чтобы выявить закономерности в распределении дислокаций вблизи интерфейса, были приготовлены специальные образцы. Они представляли собой пластины толщиной 0.2–1.5 мм, полученные путем выращивания слоя AlN с одновременным испарением подложки SiC. При сопоставлении со слоями $h_2 \approx 1$ мм, выращенными на подложках $h_1 \approx 0.5\text{--}1$ мм, обнаруживалось, что плотность трещин уменьшалась в 25–100 раз, когда растрескивание предотвращали путем испарения подложек. Оптическая микрофотография на рис. 73,с показывает, что трещины отсутствуют в пределах площади $\sim 14\text{ мм}^2$.

5.2 Испарение подложки SiC в процессе роста слоя AlN

В литературе описаны несколько способов удаления подложки карбида кремния, осуществляемых путем самопроизвольного отделения выращенного слоя AlN [282], декомпозиции подложки при осаждении слоя [283], сублимации подложки при выращивании пленки с высокой скоростью [284] или медленного испарения подложки в одном процессе с ростом слоя AlN. В рамках данной работы представляет интерес только последний подход. Остановимся подробнее на его описании.

Технологический процесс осуществлялся в контейнере из карбида тантала (TaC) в атмосфере азота под давлением 0.01–1.5 бар при температуре 1900–2100°C. Длительность процесса составляла от 12 до 22 часов. На дно контейнера помещался источник паров — поликристаллический порошок AlN, предварительно отожженный в течение 20 часов для удаления следов кислорода. Над источником и поблизости от него находилась пластина из TaC, на которой располагалась подложка диаметром 10–15 мм. Толщина подложек, приготовленных из кристаллов 6H-SiC, варьировалась от 0.1 до 1 мм. Скорости роста слоя и испарения подложки регулировали путем изменения высоты зазоров, расположенных соответственно между подложкой и источником и между подложкой и крышкой контейнера.

Для кристаллов SiC характерна низкая скорость испарения при температурах роста AlN, когда сублимационный процесс происходит в атмосфере азота, аргона или их смеси. Однако в присутствии паров AlN картина изменяется, и скорость испарения существенно возрастает. В сэндвич-ячейке с малым зазором между источником AlN и подложкой SiC скорость массопереноса можно дополнительно повысить за счет изменения ширины зазора. В результате процессы роста слоя и испарения подложки происходят одновременно без изменения температуры, несмотря на существенно различные упругости паров.

Режим технологического процесса наглядно показан на диаграмме, состоящей из трех участков (рис. 74). На первой стадии поликристаллический порошок AlN отжигают в вакууме; на следующей стадии, для которой характерна сравнительно низкая температура (1800–1850°C), выращивают

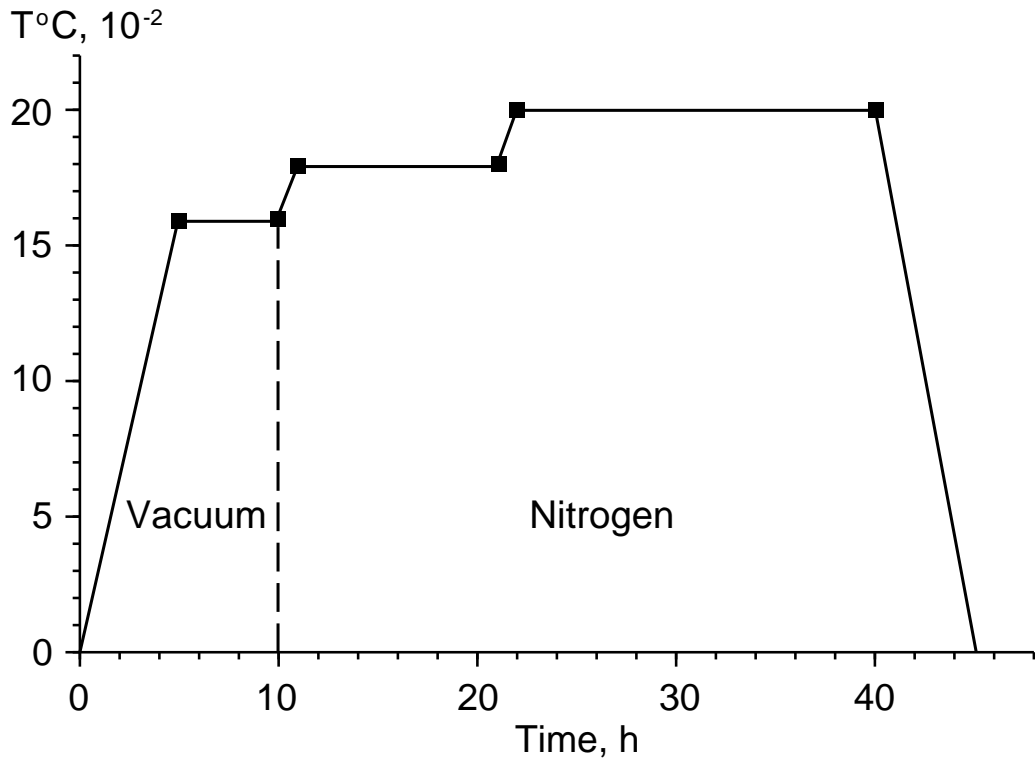


Рис. 74. Диаграмма процесса роста слоя AlN методом испарения подложки SiC.

очень тонкий слой AlN. Толщина подложки при этом не изменяется. На основной стадии температуру поднимают до 1950–2030°C. При этом толщина слоя увеличивается и, в зависимости от времени роста, достигает нескольких десятых или нескольких миллиметров. В то же время толщина подложки постепенно уменьшается до нуля. Следует особо подчеркнуть, что на низкотемпературной стадии (1800–1850°C) слой AlN растет при отсутствии испарения подложки. Выращенный таким образом слой защищает подложку от воздействия жидкой фазы, которая вызывает появление углублений. На поверхности защитного слоя происходит дальнейший рост AlN при более высокой температуре.

Скорость испарения SiC зависит не только от состава паровой фазы и температуры процесса, но также от ориентации, полярности, геометрических размеров и структурного качества подложек. Наибольшая скорость испарения наблюдается в местах выхода на поверхность микротрубок и прорастающих дислокаций. В таких местах формируются углубления, которые быстро разрастаются и превращаются в поры. В процессе продолжительного отжига поры проникают в растущий кристалл AlN.

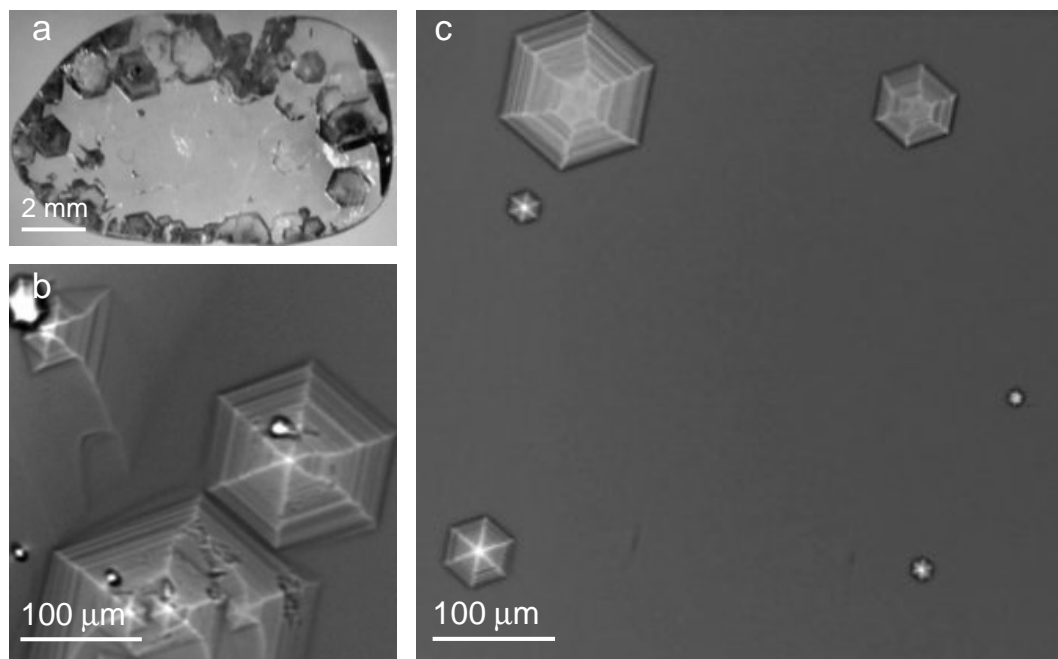


Рис. 75. (a) Микрофотография пластины AlN с испаренной подложкой, которая содержит поры, расположенные вдоль периферии образца. Толщина пластины 0.8 мм. (b, c) Фазово-контрастные изображения пор.

На рис. 75 показаны изображения пор в слое AlN с удаленной подложкой, полученные методами оптической микроскопии (a) и рентгеновского фазового контраста в геометрии на просвет (b, c). На оптической микрофотографии видно, что поры распределены вдоль периферии образца, где скорость испарения выше. Когда направление пучка СИ параллельно оси $[0001]$, метод фазового контраста обнаруживает границы, грани и террасы, сформировавшиеся в результате массопереноса, скорость которого изменялась в зависимости от кристаллографической ориентации испарявшихся поверхностей. Правильная шестиугольная форма пор свидетельствует о том, что перед нами монокристаллический образец. Площадь пор занимает около 35% общей площади поверхности образца. В то же время в центральной части образца сформировался сплошной кристалл (без трещин) площадью не менее 80 мм^2 .

Наблюдениями с помощью оптического микроскопа установлено, что на грани C ($000\bar{1}$) вероятность образования углублений существенно выше, чем на грани Si (0001). В результате первая становится более шероховатой, чем вторая. На периферии грани Si скорость испарения выше, чем в центре, и поверхность, оставаясь зеркально гладкой, становится выпуклой. Оптические микрофотографии на рис. 76, a–b демонстрирует эти эффекты для обеих

граней и дают понять, как трудно сделать правильный выбор одной из двух граней для проведения процесса однородного испарения. Решающим аргументом против испарения С-грани оказался тот факт, что скорость испарения этой грани в 1.5–2 раза ниже, чем Si-грани.

С учетом вышеперечисленных особенностей была разработана методика роста кристаллов AlN на испаряемых подложках SiC. Предпочтение отдавалось росту слоя на грани $(000\bar{1})$ С с одновременным испарением грани (0001) Si. Активизация процессов роста и испарения в сэндвич-системе достигалась путем минимизации зазоров между подложкой и источником (до 1–5 мм), а также между подложкой и крышкой контейнера (до 2–8 мм), расположенной над подложкой с ее испаряемой стороны.

Ранняя стадия формирования слоя AlN на грани $(000\bar{1})$ С подложки SiC сопровождалась появлением рельефа, который обнаруживал преобладание того или иного механизма роста. Рис. 76 наглядно показывает принципиальные

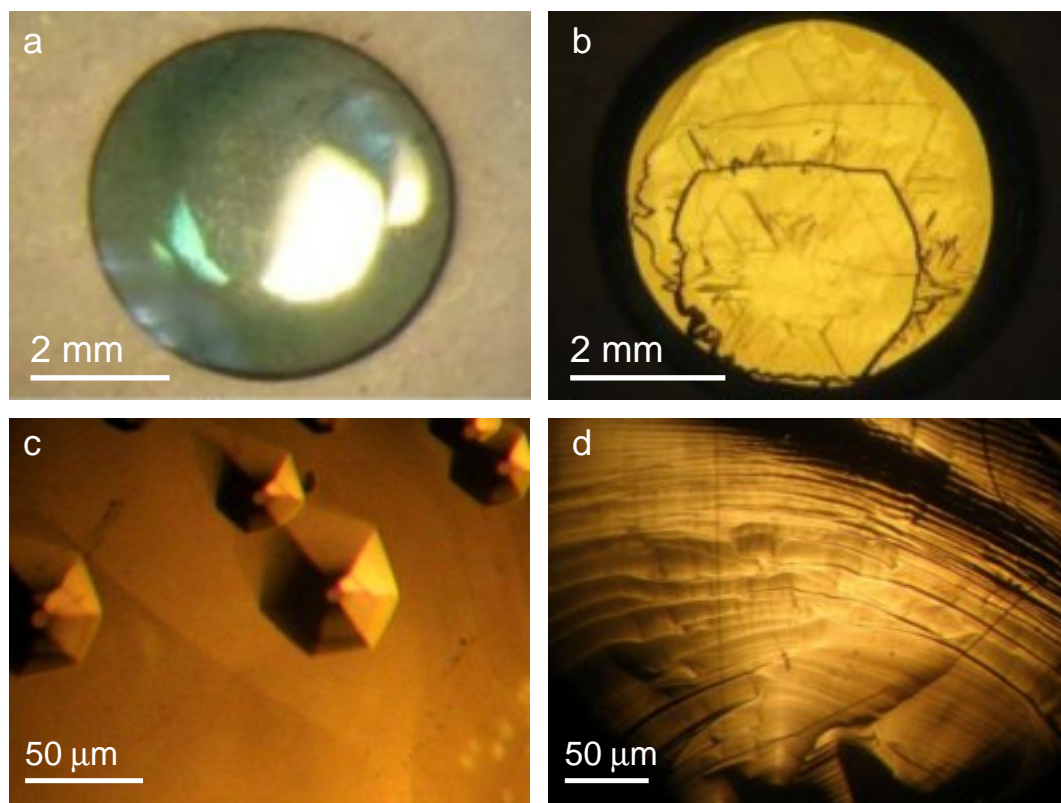


Рис. 76. Морфология поверхности подложек SiC и слоев AlN. Метод оптической микроскопии. (a) (0001) Si грань и (b) $(000\bar{1})$ C-грань частично испаренной подложки SiC. Температура 2000°C . (c) Зарождение островков на начальной стадии роста AlN. Температура 2100°C . Скорость роста 200 мкм час^{-1} . (d) Псевдослоевой рост AlN. Температура 2000°C . Скорость роста 100 мкм час^{-1}

различия между трехмерным островковым (*c*) и квази-слоевым (*d*) режимами роста. Как упоминалось ранее у других авторов, островки AlN зарождались на террасах, которые образовывались при нагревании, росли и сливались, формируя сплошной слой [285]. Добиться реализации квази-слоевого роста удалось в наиболее оптимальных условиях. Применительно к данному случаю оптимальные условия отражает диаграмма на рис. 74.

5.3 Исследование дислокационной структуры в AlN/SiC

5.3.1 Эксперименты по методу топографии в СИ

Исследования методом рентгеновской топографии проводились на источнике Pohang Light Source (PLS) с использованием полихроматического СИ из поворотного магнита накопительного кольца или монохроматического пучка из вставного устройства (вигглера) на станциях 9D и 6C соответственно. Сравним параметры пучков этих двух станций применительно к требованиям рентгенотопографических экспериментов. Пусть максимум спектра СИ находится при $E = 15$ кэВ. Это близко к уровню максимальной энергии пучка из поворотного магнита, прошедшего сквозь Ве окно и поглотитель из кремния, и к уровню минимальной энергии пучка из вигглера в рассматриваемом случае. Эксплуатация вигглера с сильным магнитным полем позволила увеличить яркость излучения и воспользоваться преимуществами более коротковолнового диапазона.

Кристаллическое совершенство тонкопленочных структур на толстых подложках исследуют с использованием геометрии отражения. Однако образцы AlN с испаренной подложкой SiC представляли собой тонкие пластины, через которые дифрагированное излучение проходило с небольшим ослаблением. С учетом того, что топограммы, снятые на просвет, более информативны и характеризуются более высокой чувствительностью, в проведенных экспериментах съемка топограмм на отражение сочеталась со съемкой проекционных топограмм на просвет. Эти последние представляют собой изображения ортогональной проекции образца и содержащихся в нем дефектов. Когда отражающие плоскости перпендикулярны поверхности и брэгговские углы малы, отраженные лучи попадают на детектор под

прямым углом. Этим требованиям удовлетворяет отражение по Лауэ $11\bar{2}0$ от образца с ориентацией (0001). Высокоразрешающий детектор VHR 75 от Photonic Science [156] можно установить так, чтобы свести к минимуму искажения топографического изображения. При этом кассету с пленкой можно размещать прямо на детекторе.

Рассмотрим идеально-совершенный кристалл AlN и выберем в качестве углового диапазона отражения двухкристальную кривую качания. Пусть источником СИ является поворотный магнит. Вследствие углового разброса электронного пучка в плоскости орбиты размер источника в горизонтальном направлении (S_h) больше, чем в вертикальном (S_v): $160(S_h) \times 60(S_v)$ мкм². Примем во внимание, что в данной работе большинство топограмм было получено в схеме совместного применения методов получения брэгг-дифракционных и фазово-контрастных изображений, когда положение плоскости рассеяния горизонтально. Угловую $\delta\omega$ и спектральную $\delta\lambda$ ширину отражения от образца, освещаемого источником с угловым размером $\Delta\theta = S_h/r_s$, где $r_s = 36$ м, можно изобразить на диаграмме зависимости длины волны от угла падения.

На рис. 77 показан фрагмент диаграммы дю Монда на фоне углового диапазона $\delta\omega$ отражения $11\bar{2}0$ для главной длины волны $\lambda = 0.8266 \text{ \AA}$ ($E = 15$ кэВ). Из рисунка видно, что $\Delta\theta < \delta\omega$. Это характерно для источников СИ третьего поколения, имеющих очень малый угловой размер. Вспомним, что для источников СИ первого поколения был характерен довольно большой угловой размер. При высоких энергиях он мог превысить угловой диапазон отражения от идеально совершенного $\delta\omega$ или даже несовершенного $\Delta\omega$ кристалла.

Интенсивность на топограмме, полученной в излучении с непрерывным спектром, — это интегральная интенсивность, пропорциональная мощности пучка между λ и $\lambda + \Delta\lambda$ [150, 151, 286]. Если $\Delta\theta > \delta\omega$, то $\Delta\lambda$ определяется угловым размером источника: $\Delta\lambda = \lambda \cot \theta_B \Delta\theta$. В противном случае ее определяет сам кристалл: $\delta\lambda = \lambda \cot \theta_B \delta\omega$, где

$$\delta\omega = \frac{2|C|}{\sin 2\theta_B} \left(\frac{\gamma_0}{|\gamma_h|} \right)^{1/2} \frac{r_e \lambda^2 F_h}{\pi V_c}. \quad (26)$$

Здесь r_e — классический радиус электрона, F_h — структурный фактор, V_c —

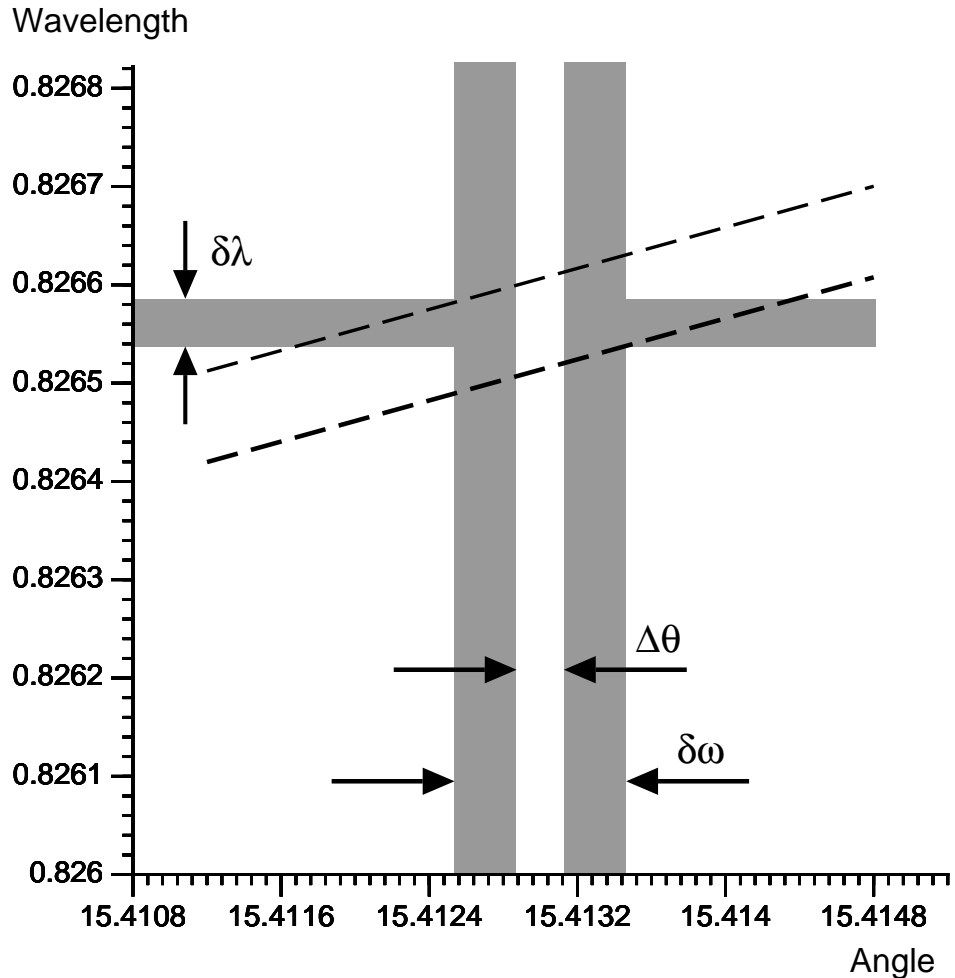


Рис. 77. Диаграмма дю Монда (штриховые линии), соответствующая источнику СИ, угловая ширина которого $\Delta\theta$ меньше, чем область отражения $\delta\omega$ свойственная идеально-совершенному кристаллу AlN со спектральной шириной полосы пропускания $\delta\lambda$. Расчет выполнен для отражения $11\bar{2}0$, $E = 15$ кэВ.

объем элементарной ячейки, γ_0 и γ_h – косинусы углов между внутренней нормалью к поверхности и направлениями падающего и дифрагированного пучков соответственно: $\gamma_0 = \mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{n}$ и $\gamma_h = \mathbf{K}_h \cdot \mathbf{n}$, где \mathbf{n} – единичный вектор, параллельный внутренней нормали к поверхности. \mathbf{K}_h и \mathbf{K}_0 – волновые векторы дифрагированного и падающего пучков.

Отметим, что угловой диапазон отражения, присущий идеально совершенному кристаллу, вносит очень малый вклад в размытие изображения точки на пленке в направлении, параллельном брэгговской плоскости. И он существенно меньше, чем тот вклад, который обусловлен дисперсией излучения с непрерывным спектром. Показанная на диаграмме величина $\delta\omega$ мала и ее вклад в ухудшение геометрического разрешения может не учитываться.

Перейдем к примеру с несовершенным кристаллом AlN. Пусть спектральный пик при заданной энергии $E = 15$ кэВ сформирован многослойным монокроматором с разрешением $\Delta E/E = 0.3\%$. Увеличение яркости, необходимое для формирования интенсивного отражения, было получено посредством многополюсного вигглера. Ориентируясь на двухкристальные кривые, измеренные для реальных кристаллов с испаренной подложкой, возьмем значение полуширины отражения по Брэггу равным $\Delta\omega = 120$ угл. сек. Заметим, что при смене геометрии дифракции и при переходе от малых брэгговских углов ($11\bar{2}0$) к большим ($11\bar{2}6$), искажения изображений останутся незначительными, если детектор займет наиболее оптимальное положение.

На рис. 78 светло-серым цветом залит угловой диапазон $\Delta\omega$, присущий отражению $11\bar{2}6$ от кристалла с дефектами. По сравнению с ним диапазон отражения, свойственный идеально-совершенному кристаллу, выглядит узкой полосой. В свою очередь, угловой размер источника, рассчитанный для вертикальной плоскости рассеяния, еще уже, когда $S_v = 29$ мкм и $r_s = 36$ м. В масштабе рис. 78 эти две полосы шириной $\delta\omega$ и $\Delta\theta$, изображающие соответственно идеальный кристалл и источник, накладываются друг на друга так, что их нельзя различить. На шкале длин волн полоса пропускания $\delta\lambda$ идеального кристалла видна между границами интервала $\Delta\lambda = \lambda \cot \theta_B \Delta\omega$, характерного для отражения $11\bar{2}6$ от несовершенного кристалла. Однако спектральная ширина брэгговского отражения от многослойника $\Delta\lambda_{ml}$ больше, чем интервал $\Delta\lambda$: $\Delta\lambda_{ml} \gg \Delta\lambda$.

Таким образом, на станциях, предназначенных для выполнения описываемых экспериментов, требования к источникам для рентгеновской топографии полностью удовлетворены. Угловая ширина источников меньше, чем угловой диапазон отражений, присущих образцам. Поэтому интегральная интенсивность рассеяния, формирующая контраст изображений, определяется характеристиками самих кристаллов. Для излучения с непрерывным спектром основной тип контраста – экстинкционный – обусловлен локальными изменениями степени совершенства кристаллической решетки. Увеличения чувствительности при ориентационном контрасте можно добиться, изменяя расстояние от образца до пленки. При этом малый угловой размер источника является залогом того, что антибрэгговское разрешение ухудшается очень незначительно. До-

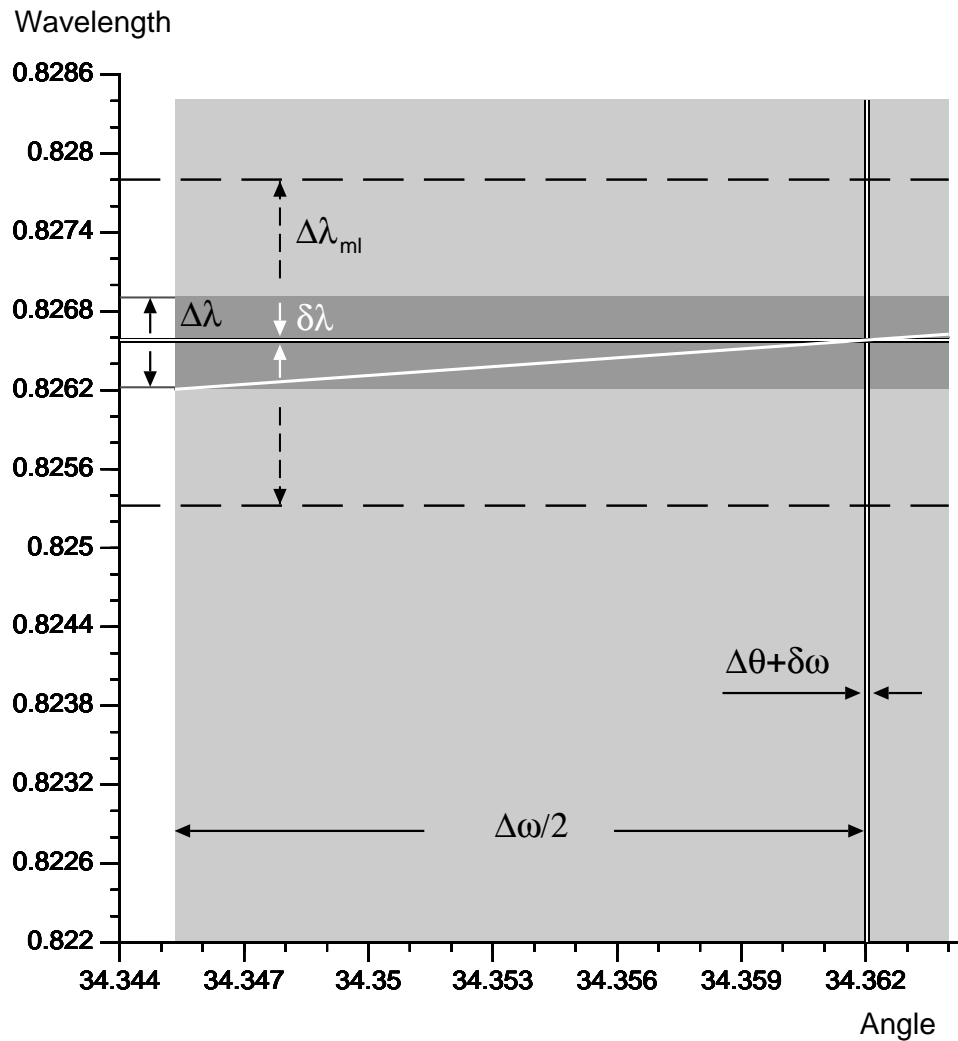


Рис. 78. Диаграмма, на которой представлены: отражение $11\bar{2}6$ от несовершенного кристалла AlN с угловой шириной $\Delta\omega = 120$ угл. сек. при $E = 15$ кэВ (серый цвет); угловая ширина источника СИ $\Delta\theta$ (белый цвет) и ширина отражения $11\bar{2}6$ для идеально-совершенного кристалла $\delta\omega$ (черный цвет). Спектральная ширина полосы пропускания идеально-совершенного и несовершенного кристаллов обозначены $\delta\lambda$ и $\Delta\lambda$ соответственно. $\Delta\lambda_{ml}$ – спектральная ширина полосы пропускания многослойника. Белой линией показана диаграмма дю Монда для идеально совершенного кристалла.

вольно высокую чувствительность при ориентационном контрасте обеспечивает коллимация пучка посредством брэгговского отражения от синтетического многослойника. Однако пик, который этот последний выделяет из непрерывного спектра СИ, шире, чем полоса пропускания несовершенного кристалла. Это позволяет уменьшить вероятность возникновения „слепых пятен“.

Целью проведенных экспериментов было наблюдение дислокаций. Для того, чтобы образец AlN не оказался слишком тонким (или слишком толстым) для дислокационного контраста, были приняты во внимание следующие оценки. Расчет минимальной толщины, при которой контраст дислокаций

наиболее сильный при всех длинах волн, дает $0.88\xi_g = 23.93$ мкм. Здесь $\xi_g = 27.19$ мкм – экстинкционная длина для Лауэ-отражения $11\bar{2}0$ при энергии излучения $E = 15$ кэВ. Образцы AlN толщиной $t \sim 0.3\text{--}0.5$ мм удовлетворяли критерию $\mu t < 1$, где μ – коэффициент поглощения AlN равный 16.751 см^{-1} . Для более толстых пластин $t \sim 1$ мм произведение $\mu t < 2$. Таким образом, образцы соответствовали вполне приемлимому интервалу толщин. Диапазон $\mu t = 2\text{--}5$, где дислокации могут обнаруживать как нормальный, так и обращенный контраст, расценивался как мало приемлемый для Лауэ-геометрии.

При выборе брэгговских отражений для съемки на отражение принимались во внимание только такие отражения, в которых контраст от дислокаций достаточно сильный, что обеспечивало выявление их на фоне изображения остального объема кристалла. С увеличением поглощения излучения в образце контраст от дислокаций на топограммах на отражение изменяется в зависимости от углов, которые падающий и дифрагированный пучки образуют с поверхностью образца [287]. В работе [288] был предложен критерий выбора отражений, обеспечивающих оптимальный контраст дислокаций в кристаллах соединений A^3B^5 при съемке на отражение.

В отличие от A^3B^5 , в которых рентгеновское поглощение велико, в кристаллах AlN или SiC глубина проникновения излучения в кристалл t_μ большая, и наблюдаемость дислокаций несложно обеспечить. После этого становится актуальным определение глубины залегания дислокаций. Критерий [288] был уточнен и адаптирован для определения глубины залегания дислокаций в кристаллах 4H-SiC [289]. В настоящем исследовании выбор отражений в геометрии Брэгга был сделан с учетом этого последнего критерия.

Завершая описание условий эксперимента, обсудим разрешение рентгено-топографических изображений. Хорошо известно, что в лабораторных условиях большой размер фокуса рентгеновской трубки в направлении, перпендикулярном к плоскости рассеяния, и связанное с этим снижение антибрэгговского разрешения, является серьезной проблемой. Произведение эффективной высоты фокуса на частное от деления расстояния до пленки к длине коллиматора, не должно быть больше 1–2 микрон. Стремление получить высоко-

качественные топограммы вынуждает экспериментатора ставить пленку как можно ближе к образцу.

На источнике СИ антибрэгговское разрешение определяется поперечным размером источника. Этот размер можно представить так, что электроны, движущиеся с релятивистской скоростью, распределены по координатам и излучают независимо. Интенсивность свечения изменяется по гауссовому закону, то есть в поперечном направлении источник имеет полуширину. Воспользовавшись обозначениями, введенными ранее, для антибрэгговского разрешения R имеем:

$$R = \frac{r_d S}{r_s}, \quad (27)$$

Здесь S – размер источника, r_s и r_d соответственно расстояния от источника до образца и от образца до детектора. Искажение топографического изображения можно представить и математически описать как смещение картины для точечного источника на величину, равную R . Малые поперечные размеры источников, обеспечиваемых магнитными системами вывода пучка на синхротронах третьего поколения, позволяют с уверенностью утверждать, что топограмма очень мало изменится с увеличением отношения r_d/r_s . Геометрическое разрешение R остается на уровне нескольких десятых долей микрона при увеличении расстояния r_d до полуметра, и на уровне единиц микрон при увеличении r_d до одного метра. Это на 1–2 порядка больше, чем расстояние от образца до пленки, допустимое в лабораторных условиях. Поэтому на источнике СИ можно исследовать образцы очень большого размера, размещать громоздкое оборудование вокруг образцов и т. д.

Однако изменение разрешения можно поддерживать на субмикронном уровне только тогда, когда относительная угловая стабильность образца и детектора лучше, чем ~ 2.5 угл. сек. [290]. Это диктует весьма жесткие требования к креплению детектора, пленки и образца, а также накладывает ограничения на уровень шумов, которые вызывают вибрации. В частности, уровень акустического шума при работе системы охлаждения рентгеновского детектора прямого преобразования, как правило, высокий.

Другое дело, если размер источника оказывается на уровне нескольких сотен микрон. Характерной отличительной чертой вигглеров, основное досто-

инство которых состоит в увеличении яркости, является довольно большой размер источника в горизонтальном направлении. В рассматриваемом нами случае проекция источника в вертикальной плоскости рассеяния имела высоту всего 29 микрон. Однако горизонтальный размер был существенно больше вертикального: 495 мкм. Искажение в антибрэгговском направлении не превышало 1–2 мкм для расстояния $r_d \leq 0.2$ м. Расстояние можно увеличить, если использовать щели, ограничивающие пучок.

5.3.2 Наблюдение дислокаций методом топографии

Рассмотрим образец AlN в виде пластины, отполированной с обеих сторон до толщины $h^{\text{AlN}} = 600$ мкм. Рассматриваемый здесь слой был выращен на подложке SiC, которую испаряли в процессе роста слоя в течение 16 часов при максимальной температуре 2000°C и давлении азота 1 бар. Толщина выращенного слоя превышала толщину испаренной подложки примерно в 4 раза: $h^{\text{SiC}} = 140$ мкм. Это в 3.5 раза меньше, чем должна была бы быть ожидаемая (критическая) толщина нестрессканного (сплошного) слоя на неиспаренной подложке. Согласно нашей модели, $(h^{\text{AlN}}/h^{\text{SiC}})_{cr} \approx 15$ и $h_{cr}^{\text{AlN}} \approx 2100$ мкм.

Примем за основную длину волны λ в максимуме спектра излучения из поворотного магнита, прошедшего сквозь бериллиевое окно и поглотитель из кристаллического кремния, значение $\lambda = 0.8266 \text{ \AA}$ ($E = 15$ кэВ). Коэффициент поглощения рентгеновского излучения в кристалле AlN для этой длины волны равен $\mu = 16.75 \text{ см}^{-1}$ [162]. Оценив произведение $\mu h^{\text{AlN}} = 1.01$, заключаем, что данный образец соответствует интервалу толщин, для которого использование сильных брэгговских отражений должно привести к появлению дислокационного контраста на топограммах.

Приступая к съемке лауэтопограмм в непрерывном спектре СИ, начнем с определения ориентации образца относительно пучка. Используем для этого лауэграммы, записанные на плоскопанельный детектор площадью $35 \times 43 \text{ см}^2$ [154]. Соответствующие повороты приведут нужные плоскости в отражающие положения. Лауэграмма, записанная на детектор, показана на рис. 79. Отражения от кристаллических плоскостей расположены в соответствии с симметрией решетки и ориентацией образца. Согласно лауэграмме,

пластина состоит из монокристаллического AlN, индексирование интенсивных отражений которого было выполнено на основе стандартных данных для политипа 2H. Расчетная картина, построенная для ориентации граней (0001) и $(\bar{1}100)$ соответственно перпендикулярно и параллельно пучку СИ, совпала с экспериментальной, когда пластина была установлена перпендикулярно направлению пучка. Это подтвердило, что ее поверхность имела ориентацию (0001), и во время экспозиции направление $[11\bar{2}0]$ располагалось параллельно вертикальной оси панели детектора.

Настроив образец, следует добиваться оптимального размера изображения, постепенно открывая щели, ограничивающие пучок. При этом в качестве практического ориентира для определения размера при заданном расстоянии r_s используют величину расходимости излучения. Если образец меньше, чем высота конуса излучения, то следует ограничивать пучок, чтобы минимизировать паразитное рассеяние.

Оценим антибрэгговское разрешение для расстояния образец–детектор $r_d = 193$ мм. Для источника высотой 60 мкм, расположенного на расстоянии $r_s = 36$ м, величина разрешения R (27) составляет примерно полмикрона. При выборе экспозиции дольше, чем несколько секунд, можно ожидать отрицательного влияния угловой нестабильности образца относительно детектора, которая приведет к тому, что разрешение станет хуже ожидаемого,

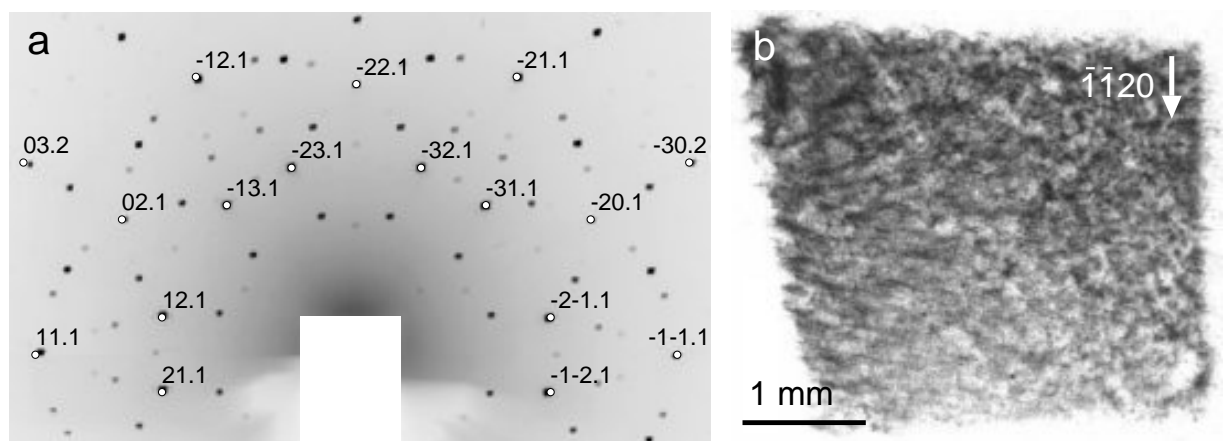


Рис. 79. (а) Лауэграмма пластины AlN, выращенной на испаряемой подложке SiC. Поверхность пластины перпендикулярна пучку и расстояние до детектора равно 193 мм. Расчетные и экспериментальные изображения интенсивных отражений перекрываются, когда грани (0001) и $(\bar{1}100)$ расположены соответственно перпендикулярно и параллельно пучку. (б) Топограмма в полихроматическом СИ.

но оно никогда не ухудшится настолько, чтобы приблизиться к размеру точки на детекторе, который в данном случае равен 30 мкм. Поэтому для регистрации топограмм следует использовать высокоразрешающую пленку. Располагая кассету с пленкой прямо на панели детектора, получаем топограмму с изображением дислокаций в вышеописанном кристалле AlN (рис. 79). Из топографического изображения не ясно какова плотность наблюдаемых дислокаций. Однако на вопрос: „Имеются ли в данном кристалле дислокации?“ можно дать однозначный положительный ответ.

Перейдем к рассмотрению более толстого слоя AlN, выращенного в течение 21 часа при температуре 2020° С. Толщина слоя без подложки равна $h^{\text{AlN}} = 1500$ мкм. Толщина испаренной подложки была равна $h^{\text{SiC}} = 250$ мкм. Заметим, что этот довольно толстый образец, превышающий толщину подложки в 6 раз, находится в мало приемлимом интервале толщин: $\mu h^{\text{AlN}} = 2.51$. В рассматриваемом случае спектр монохроматический, но довольно широкий: $\Delta E/E = 0.3\%$. Коллимация пучка путем отражения от многослойника повышает чувствительность при ориентационном контрасте, что сразу проявляется на топограммах.

В монохроматическом излучении можно использовать высокоразрешающий детектор VHR 75. На топограмме, полученной в отражении $2\bar{1}\bar{1}6$, два „островка“ — G_1 и G_2 — не находятся в брэгговском положении (рис. 80, *a*). В остальной части кристалла ориентация кристаллической решетки изменяется более плавно. Соответствующим поворотом образца (в данном случае вокруг нормали к поверхности) область G_1 приводится в брэгговское положение, однако отражение от G_2 по-прежнему отсутствует (рис. 80, *b*). Согласно диаграмме дю Монда (рис. 78), спектральная ширина $\Delta\lambda_{\text{ml}}$ отражения от многослойника шире, чем полоса пропускания $\Delta\lambda$ несовершенного кристалла AlN. Для той части кристалла, где дисторсия непрерывна, кристаллические плоскости удовлетворяют условию Брэгга. Однако оценить относительный вклад ориентационного и экстинкционного контраста не представляется возможным.

Интересно сравнить топограммы для двух вышеописанных пластин AlN. Однако прежде, чем проводить сравнение, заметим, что на рис. 80 изображен один и тот же образец, проекции объема которого записаны в условиях более низкого и более высокого разрешения на детекторе (*a*, *b*) и

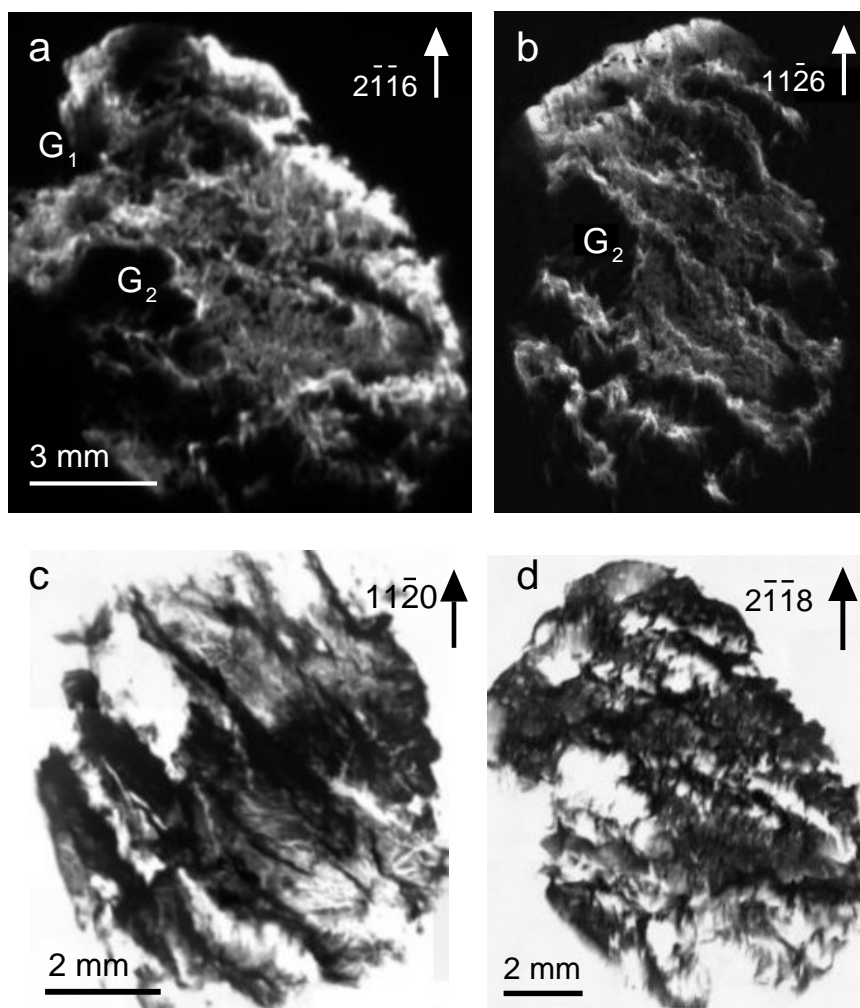


Рис. 80. Топограммы пластины AlN, выращенной на испаряемой подложке SiC. (a) Области кристалла G_1 и G_2 не дают контраста для отражения $2\bar{1}\bar{1}6$, когда длина волны $\lambda = 0,8266 \text{ \AA}$. (b) Область G_1 находится в брэгговском положении для отражения $11\bar{2}6$. Изображения (a) и (b) записаны на рентгеновский детектор прямого преобразования VHR 75. (c) Отражение по Лауэ $11\bar{2}0$. (d) Отражение по Брэггу $2\bar{1}\bar{1}8$. Изображения (c) и (d) зарегистрированы на пленку Kodak M100.

на пленке (c, d) соответственно. Топограммы на пленке, увеличенные через оптический микроскоп, показывают черный цвет там, где интенсивность в избытке. Изображения на детекторе, напротив, черные там, где интенсивность отсутствует. Принято считать, что положительный контраст соответствует избытку дифрагированной интенсивности, а отрицательный – ее недостатку. Другими словами, на пленке положительный контраст – черный (негативный), а на детекторе он белый (позитивный).

Между изображениями на рис. 80 экспозиция отличалась менее, чем на порядок. Однако с учетом общей длительности процессов проявления в некоторых экспериментах можно получить значительный выигрыш во

времени, если записывать изображения только на детектор. И при этом не проиграть в качестве полученной информации, если способ решения соответствует поставленной задаче. Метод топографии в применении к сильно нарушенным кристаллам имеет ограниченные возможности. В частности, плотность дислокаций не определяется прямой визуализацией. Грубая оценка состоит в том, что перекрытие изображений дислокаций наступает при верхнем пределе плотности на уровне $\sim 10^6 \text{ см}^{-2}$, если топограммы получены в геометрии Брэгга. Тем не менее, рентгеновские изображения оказываются полезными для описания типов дислокационных структур. Охарактеризовать тип дислокационной структуры в целом — такую задачу можно решить на основе изображений относительно низкого разрешения.

Высокоразрешающий рентгеновский детектор прямого преобразования, как правило, имеет размер точки больше 10 мкм. В частности, детектор VHR 75 имеет размер точки 15.6 мкм в диапазоне энергий 5–35 кэВ. В непроявленных рентгеновских пленках с очень мелким зерном размер зерна меньше 0.1 мкм. Сравнивая между собой топограммы на рис. 80, мы замечаем, что потенциально высокое разрешение пленки оказывается не эффективным для обнаружения таких деталей на топограмме, которые отсутствовали бы при регистрации этой топограммы с помощью детектора. К примеру, в отражении по Лауэ $11\bar{2}0$ (рис. 80, *с*) изображения дислокаций не разрешаются, и изображения границ разориентации очень широкие. Они изменяют ширину и цвет в соответствии с направлениями дифрагированных пучков. При этом способ регистрации влияет только знак контраста.

Сравнение топограмм относительно тонкой и более толстой пластин AlN с испаренной подложкой выявляет заметные различия в типах дислокационных структур. На топограмме тонкой пластины ($h^{\text{AlN}} = 600 \text{ мкм}$), полученной в белом СИ (рис. 79), контраст сформирован локальными изменениями степени совершенства кристалла. Ячейки, видимые на топограмме за счет отрицательного контраста, окружены границами, которые характеризуются более сильной отражательной способностью. Последняя свидетельствует о высокой плотности дефектов структуры. Местами возникают градации серого цвета, которые показывают, что границы не сплошные. Форма ячеек искажена из-за наклонного падения лучей на пленку. Тем не менее, очевидно, что

они не имеют преимущественной ориентации. На неискаженных участках изображений размер ячеек $\sim 100-300$ мкм. Дислокационная структура является пространственно-неоднородной, но не фрагментированной. Подобное распределение дислокаций в деформированных металлах получило название „ячеистой структуры“. Применение понятия к рассматриваемому случаю возможно при условии, что плотность дислокаций в кристаллах AlN на несколько порядков ниже, и размер ячеек на несколько порядков больше.

В более толстой пластине AlN ($h^{\text{AlN}} = 1500$ мкм) метод топографии выявляет признаки блочной структуры. В излучении, колиммированном отражением от многослойника, области, разориентированные относительно матрицы, имеют отрицательный контраст. При этом они могут быть несовершенны в той же мере, что и основная решетка. На рис. 80, *b* экстинкционное изображение области G_1 , выведенной в отражающее положение поворотом образца, похоже на изображение основной решетки. Структурная неоднородность проявляется в виде границ разориентации, проходящих сквозь весь объем образца. Нарушения решетки в границах сильнее, чем между границами, но последние еще не делят кристалл на фрагменты.

Для ответа на вопрос о том, является ли блочная структура этапом эволюции дислокационного ансамбля с толщиной слоя AlN, необходимы дополнительные исследования. Положительный ответ противоречил бы тому, что качество слоев улучшается по мере увеличения толщины [277–279]. С другой стороны, нельзя пренебрегать присутствием в растущем кристалле дислокационных источников, обусловленных процессом испарения подложки SiC. Выше были перечислены факторы, приводящие к неоднородной скорости испарения SiC, в результате которой в слое AlN могут сформироваться поры. Процесс испарения, более медленный в центре структуры, может приводить к перераспределению напряжений и к снижению качества растущего слоя. Не останавливаясь на этих неизученных еще вопросах, вернемся к исследованию дислокационной структуры в слое вблизи интерфейса AlN/SiC. Обратимся к методу рентгеновской дифрактометрии, который определяет тип дефектной структуры по поведению кривых дифракционного отражения.

5.3.3 Особенности кривых дифракционного отражения

Влияние дислокаций на кривую дифракционного отражения, измеренную для довольно большого объема образца, намного слабее, чем их вклад в контраст изображения микроскопического объема, окружающего дислокацию. Принято считать, что метод рентгеновской дифрактометрии не дает информации о дислокационной структуре, когда плотность дислокаций в образце ниже, чем 10^6 см^{-3} . В отличие от пленок GaN, в которых плотность дислокаций составляет $10^8 - 10^9 \text{ см}^{-2}$, в объемных кристаллах AlN плотность прорастающих дислокаций вдали от интерфейса находится в диапазоне, занимающем промежуточное положение между 7×10^4 и $5 \times 10^5 \text{ см}^{-2}$ [277–279]. Однако кривые качания от тонких пленок AlN всегда уширены под влиянием трещин, которые формируются при релаксации термических напряжений. Привлечение метода рентгеновской дифрактометрии для исследования слоев AlN с испаренной подложкой имело целью составить представление о типе дислокационной структуры вблизи интерфейса.

Измерения были выполнены методом трехкристальной дифрактометрии в излучении $\text{CuK}\alpha$ на приборе Bruker D8 Discover мощностью 2 кВт. Монохроматором и анализатором служили совершенные кристаллы германия. Кривые распределения интенсивности в зависимости от угла, измеренные путем поворотов образца при неподвижном анализаторе (ω -сканирование) и путем связанного $2\omega - \omega$ -сканирования образца и анализатора были получены в геометрии Брэгга для отражений 0002, 0004 и $10\bar{1}4$.

Проведем сравнение двух слоев А и В, время роста которых составило соответственно 21 и 18 часов. За это время толщина слоев достигла величин $h_A^2 = 1.7 \text{ мм}$ и $h_B^2 = 0.75 \text{ мм}$. Технологические процессы проводились при температурах $T_A = 2020^\circ \text{ С}$ и $T_B = 2000^\circ \text{ С}$ в атмосфере азота при давлении 1.01 бар. Толщина испаренных подложек была равна $h_A^1 = 2.7 \text{ мм}$ и $h_B^1 = 0.15 \text{ мм}$. Сравнение двухкристальных кривых качания симметричных отражений показало, что для образца А они шире, чем для образца В.

На рис. 81, *a* показана трехкристальная кривая качания, пиковая интенсивность которой растет с толщиной образца. Однако на двухкристальных кривых интенсивность от более толстого слоя А ниже, чем от слоя В (рис. 81, *b*).

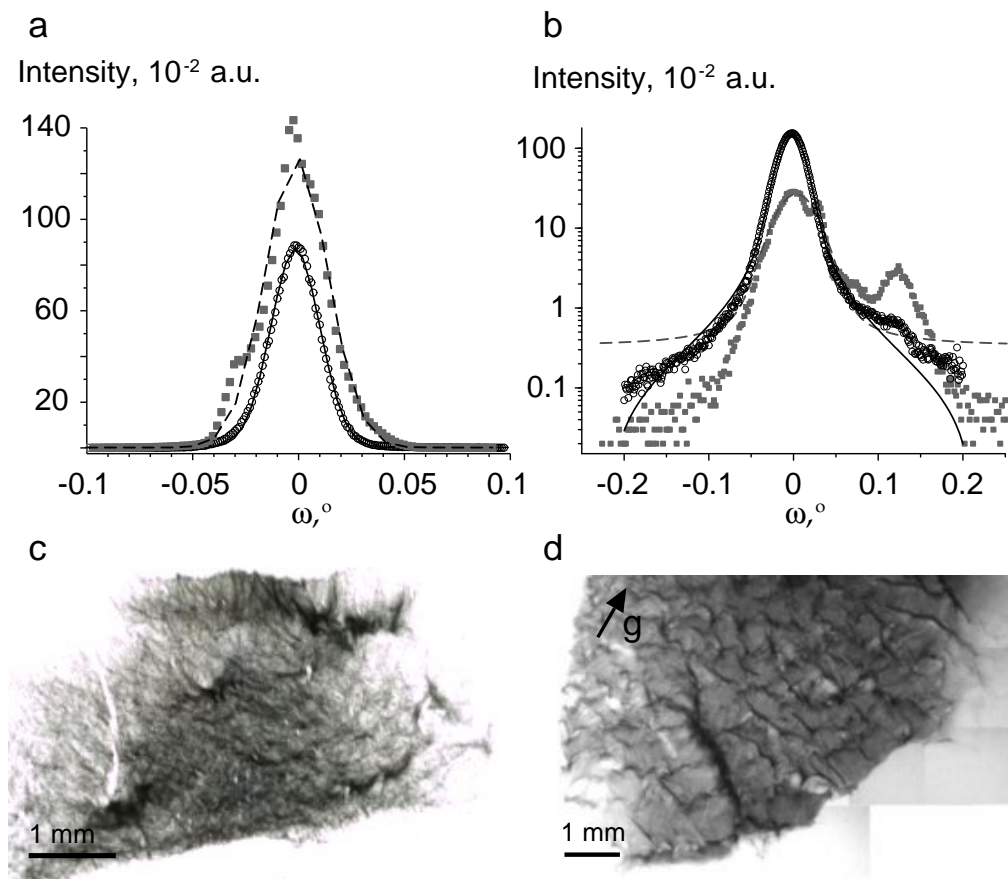


Рис. 81. Кривые дифракционного отражения и рентгеновские топограммы слоев А и В с испаренной подложкой. (а) Трехкристалльные кривые качания в линейном масштабе, аппроксимированные функцией Гаусса. Отражение 0004. Слой А – сплошные квадраты, слой В – незакрашенные кружки. (б) Двухкристалльные кривые качания, аппроксимированные функцией Войта. Рефлекс $10\bar{1}4$ в геометрии скользящего отражения. (с) Слой В. Рентгеновская топограмма на просвет в белом СИ. (д) Слой А. Топограмма в монохроматическом СИ с энергией фотонов $E=20$ кэВ. $g = \bar{1}2\bar{1}8$. Изображения получены на рентгеновских пленках Kodak SR45 (с) и M100 (д).

Поведение пиковой интенсивности, которая более чувствительна к изменению структурного совершенства, чем интегральная интенсивность, указывает на то, что слой А имеет более высокую плотность дислокаций, чем слой В. Кривые ω -сканирования для образца А содержали дополнительные пики, которых не было на кривой $2\omega - \omega$ сканирования (данные не показаны).

Профили дифракционных кривых аппроксимировались функциями Гаусса и Войта. Вблизи центра отражения профили имели гауссову форму. Однако изменение интенсивности на хвостах кривых существенно отклонялось от гауссовой формы. В большинстве случаев учет вклада функции Лоренца путем свертки по эмпирической формуле [291] приводил к удовлетворительному соответствию расчетного и экспериментального профилей интенсивности.

Пример приведен на рис. 81,*b*, где форма двухкристальной кривой асимметричного отражения $10\bar{1}4$ аппроксимирована функцией Войта.

Значения полуширины (full width at half height maximum, FWHM) пиков брэгговских отражений слоев А и В представлены в таблице 7 в сравнении с литературными данными. В таблице использованы следующие сокращения: слои AlN без опоры на подложки (AlN freestanding, ANF); пленки без опоры на подложки (AlN freestanding films, ANFF [284]); объемные кристаллы AlN на затравках SiC (AlN bulk, ANB) [278, 280]. В последней строке таблицы приведены литературные данные для структуры GaN/SiC [274].

Для обоих образцов А и В трехкристальные кривые качания для симметричного отражения 0002 имеют полуширину $W_\omega \approx 100$ угл. сек., и они не шире, чем двухкристальные кривые w объемных кристаллов AlN высотой 8–10 мм [278]. Для слоев А и В уширение ω – кривых, как правило, больше, чем кривых $2\omega - \omega$ – сканирования. Это означает, что в образцах имеется слабая деформация, но разориентация распределена в большом угловом интервале. По литературным данным, уширение двухкристальных кривых объемных кристаллов также обусловлено разориентациями решетки, которые вызваны прорастающими дислокациями.

Из таблицы видно, что объемные кристаллы (ANB) и пленки (ANFF) характеризуются более широкими пиками асимметричных отражений по сравнению с симметричными. Уширение такого типа в GaN было объяснено

Таблица 7. Сравнение полуширины двухкристальных w [угл. сек.] и трехкристальных W_ω и $W_{2\omega-\omega}$ [угл. сек.] кривых дифракционного отражения слоев А и В, образцов ANFF, ANB и слоев GaN/SiC толщиной h [мм]

Рефлекс	0002		0004		10 $\bar{1}2$		10 $\bar{1}3$	10 $\bar{1}4$			
Образец	h	w	W_ω	$W_{2\omega-\omega}$	W_ω	$W_{2\omega-\omega}$	w	w	w	W_ω	$W_{2\omega-\omega}$
Слой А	1.5		125	40	114	110			187	101	52
Слой В	0.6		116	18	96	37			117	92	39
ANFF ¹	1	137					231				
ANB ²	8	72						200			
ANB ³	8	380					300				
GaN/SiC	8e-3		60							470	

1 – Ref. [284]. 2 – Ref. [278]. 3 – Ref. [280].

влиянием краевых прорастающих дислокаций. В частности, для пленок GaN/SiC пики асимметричных отражений были шире симметричных в 2–8 раз, когда плотность краевых прорастающих дислокаций превышала плотность винтовых на три порядка.

В описываемом нами случае слою А свойственно заметное уширение двухкристальной кривой асимметричного отражения $10\bar{1}4$: $w = 187$ угл. сек. В то же время трехкристальные кривые качания W_ω отражений $10\bar{1}4$ и 0004 имеют очень близкие значения полуширины: 101 и 114 угл. сек. соответственно. Сравнительно слабое уширение кривых симметричных отражений указывает на относительно низкую плотность прорастающих дислокаций винтового и смешанного типа. В данной работе мы не наблюдали уширения асимметричных отражений по сравнению с симметричными. Однако следует заметить, что копланарное асимметричное отражение $10\bar{1}4$ менее чувствительно к краевым дислокациям, чем отражения от плоскостей с большим углом наклона ($\approx 90^\circ$) относительно поверхности.

Анализ по методике Вильямсона–Холла, использованной, например, в работе [273], позволяет сделать приблизительную оценку средней разориентации τ областей когерентного рассеяния в слоях А и В. Из кривых качания симметричных отражений можно определить углы наклона отражающих плоскостей относительно направления $[\bar{1}2\bar{1}0]$, перпендикулярного одновременно и к нормали поверхности, и к плоскости рассеяния. Углы наклона, полученные из линейной зависимости $W_\omega \times \sin \omega$ от $\sin \omega$, равны $\tau_A = 120$ угл. сек. и $\tau_B = 68$ угл. сек. В то же время зависимость $W_{2\omega-\omega} \times \cos \omega$ от $\cos \omega$ дает возможность вычислить среднюю деформацию ϵ в направлении нормали к поверхности образца. Средняя деформация отличается между слоями А и В: $\epsilon_A = 8 \times 10^{-4}$, $\epsilon_B = 2 \times 10^{-4}$. Наконец, средний размер области когерентного рассеяния для слоя А меньше, чем для слоя В. Уширение отражений обратно пропорционально размеру области и прямо пропорционально плотности дислокаций. Слой В имеет более низкую плотность дислокаций, чем слой А. Заметим, что применение этого параметра для определения плотности дислокаций не является корректным до тех пор, пока не установлен преимущественный тип дислокационной структуры.

Рентгеновские топограммы слоев В и А (рис. 81, *c–d*) выявляют

особенности дислокационной структуры в этих слоях. Более тонкому слою В свойственно неоднородное распределение дислокаций, локализованных в разных системах скольжения. В непрерывном спектре СИ практически все участки образца, включая те, которые прилегают к границам ячеек, изображаются на топограмме. Плотность дислокаций находится в интервале, верхняя граница которого превышает величину $5 \times 10^5 - 10^6 \text{ см}^{-2}$.

В слое А (рис. 81, *d*) ансамбль дислокаций относится к типу блочных структур с малоугловыми границами субзерен. В колиммированном излучении от многослойника области кристалла между границами находятся в отражающем положении. Исходя из оценки полуширины кривой отражения многослойника при энергии $E = 20 \text{ keV}$, заключаем, что максимальная разориентация субзерен не превышает 6.5 угл. мин. Данная оценка не противоречит той (1–2 угл. мин.), которая была получена методом дифрактометрии при анализе уширений пиков симметричных отражений.

5.3.4 Модель релаксации напряжений несоответствия в AlN/SiC

Вышеописанные наблюдения свидетельствуют против того, что дислокационная структура в слоях AlN на подложках SiC формируется в результате преодоления островковой стадии роста, как в пленках GaN. Данные метода рентгеновской дифрактометрии — сравнительное уширение пиков симметричных и асимметричных отражений, профили кривых дифракционных отражений, форма карт рассеяния вокруг узлов обратной решетки — не подтверждают гипотезу о преобладании дислокаций преимущественно краевого типа над винтовыми и смешанными. В соответствии с выводами других авторов, ссылки на которых приведены выше, установлено, что в слоях AlN формируется мозаичная дислокационная структура. Результаты, полученные в данной работе, позволяют уточнить представление о распределении дислокаций на начальной стадии роста AlN.

Релаксацию напряжений несоответствия в слоях AlN можно описать генерацией и скольжением дислокаций с поверхности растущего слоя. Рассмотрим теоретическую модель, которая учитывает две основные особенности образования дислокационных структур в слоях AlN, выращиваемых на гексагональных подложках. Во-первых, предполагается, что образование дислока-

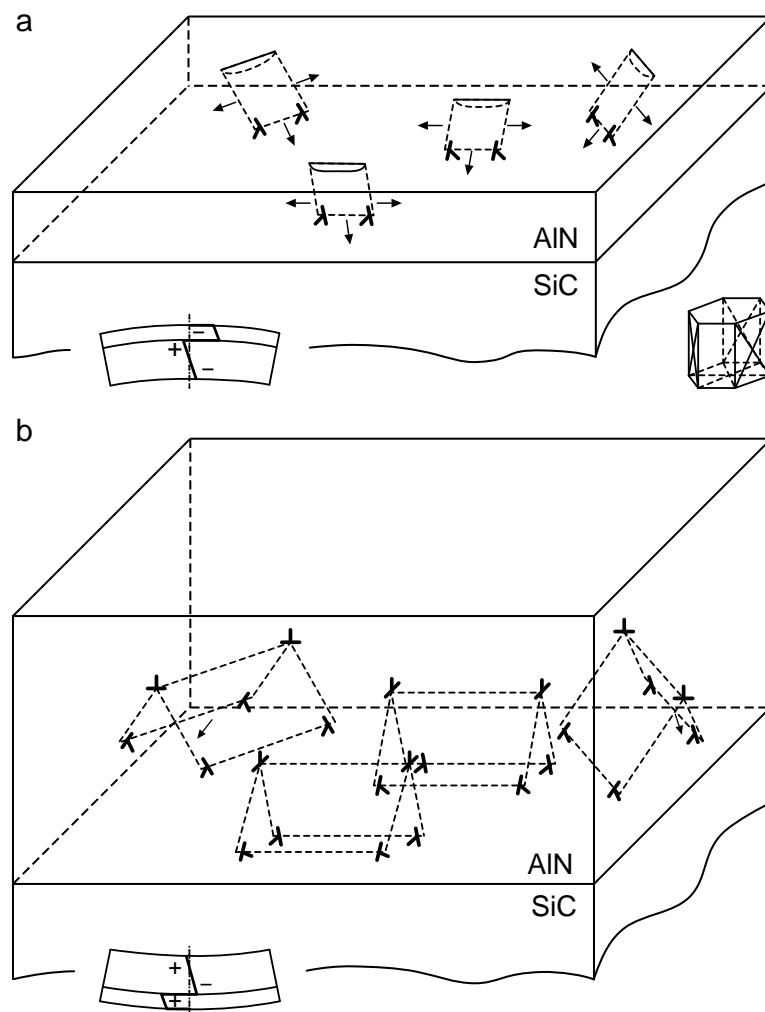


Рис. 82. Схема действия возможных механизмов релаксации напряжений несоответствия при выращивании монокристаллического слоя AlN на испаряющейся подложке SiC. Начальная стадия релаксации за счет зарождения на поверхности сжатого слоя AlN скользящих дислокационных полупетель при толщине слоя, много меньшей, чем толщина подложки (a). Конечная стадия релаксации путем формирования в слое AlN Λ -образных дислокационных конфигураций, обеспечивающих релаксацию напряжений несоответствия как вблизи, так и вдали от интерфейса AlN/SiC (b). На вставках схематично показаны эпюры напряжений несоответствия в поперечном сечении структуры и плоскости пирамидального скольжения в слое AlN.

ций несоответствия происходит за счет пирамидального скольжения [292]. Во-вторых, учитывается, что плотность дислокаций быстро уменьшается в направлении от интерфейса между AlN и SiC к свободной поверхности слоя AlN [277, 293–295].

Основная идея модели показана на рис. 82. Будем считать, что на свободной поверхности растущего слоя AlN, который находится в плоском напряженном состоянии двухосного сжатия из-за решеточного несоответствия с подложкой SiC в полярной ориентации, зарождаются скользящие дисло-

кационные полупетли (рис. 82, *a*). Эти полупетли скользят в направлении к интерфейсу AlN/SiC и одновременно расширяются вдоль него, как показано стрелками на рисунке. Достигнув интерфейса и расширяясь вдоль него, они частично снимают решеточное несоответствие. В то же время в результате зарождения полупетель на поверхности слоя образуются ступеньки, которые могут служить местами предпочтительного зарождения по такому же механизму следующих полупетель, скользящих по соседним плоскостям пирамидального скольжения. Испускание поверхностью этих „вторичных“ дислокационных полупетель должно сопровождаться исчезновением поверхностных ступенек. Когда „вторичные“ дислокационные полупетли достигают интерфейса, формируются новые Λ -образные дислокационные конфигурации, состоящие из двух дислокационных полупетель, „первичной“ и „вторичной“, связанных друг с другом дислокационными отрезками, параллельными поверхности слоя (рис. 82, *b*).

На рис. 83 более подробно показаны последовательные этапы образования Λ -образных дислокационных конфигураций. Предположим, что в начальном состоянии на поверхности подложки SiC формируется плоский, когерентно сопряженный с подложкой слой AlN толщиной h , много меньшей толщины подложки (рис. 83, *a*). При достижении толщиной h некоторого критического значения происходит зарождение дислокационной полупетли с вектором Бюргерса \mathbf{b}_1 , которая скользит по пирамидальной плоскости скольжения в направлении от поверхности слоя AlN к интерфейсу AlN/SiC (рис. 83, *b*). Этот процесс наблюдался экспериментально и подробно обсуждался в работе [292]. Поверхностная ступенька, которая возникла в результате зарождения дислокационной полупетли, впоследствии зарастает и меняет свою грань на зеркально отраженную относительно плоскости, нормальной к поверхности слоя (рис. 83, *c*). Этому способствует уменьшение площади свободной поверхности слоя и соответствующая релаксация его поверхностной энергии. В то же время эта поверхностная ступенька по-прежнему остается концентратором напряжений несоответствия и возможным источником новой (вторичной) дислокационной полупетли. Если такая полупетля на ней зарождается, то она имеет вектор Бюргерса \mathbf{b}_2 и скользит симметрично по направлению к испущенной ранее дислокационной петле с вектором

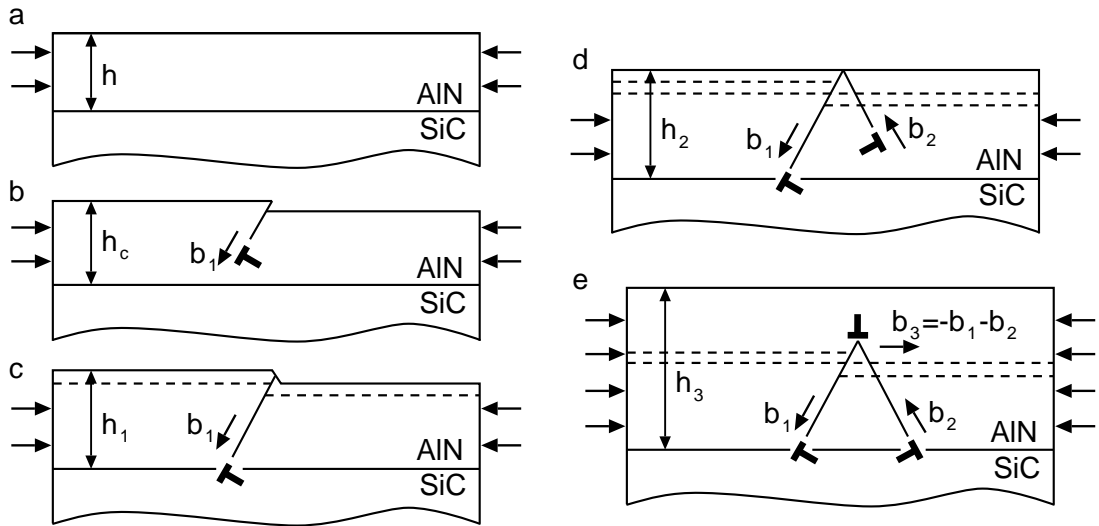


Рис. 83. Теоретическая модель образования Λ -образной дислокационной конфигурации вблизи интерфейса AlN/SiC. Начальное состояние плоского когерентного слоя AlN толщиной h , много меньшей толщины подложки SiC (a). Зарождение дислокационной полупетли с вектором Бюргерса \mathbf{b}_1 , скользящей по плоскости пирамидального скольжения в направлении от поверхности слоя AlN к интерфейсу AlN/SiC при $h = h_c$ (b). Поверхностная ступенька зарастает и меняет свою грань на зеркально симметричную при $h = h_1 > h_c$; наклоненный отрезок линии \mathbf{b}_1 -дислокации прорастает от этой грани до интерфейса AlN/SiC. Штриховая линия показывает положение поверхности слоя AlN при $h = h_c$ (c). На поверхностной ступеньке зарождается „вторичная“ дислокационная полупетля с вектором Бюргерса \mathbf{b}_2 , которая скользит симметрично относительно полупетли \mathbf{b}_1 -дислокации от поверхности слоя AlN к интерфейсу AlN/SiC при $h = h_2 > h_1$. В результате поверхностная ступенька исчезает, и начинается формирование Λ -образной дислокационной конфигурации. Штриховые линии показывают положения поверхности слоя AlN при $h = h_c$ и $h = h_1$ (d). Конечная Λ -образная дислокационная конфигурация с верхним дислокационным отрезком, имеющим вектор Бюргерса $\mathbf{b}_3 = -\mathbf{b}_1 - \mathbf{b}_2$ и замыкающим полупетли \mathbf{b}_1 - и \mathbf{b}_2 -дислокаций при $h = h_3 > h_2$ (e).

Бюргерса \mathbf{b}_1 (рис. 83,d). В результате поверхностная ступенька исчезает, и начинается формирование Λ -образной дислокационной конфигурации. Когда вторичная дислокационная петля достигает интерфейса (рис. 83,e), формирование Λ -образной дислокационной конфигурации завершается с образованием верхнего дислокационного отрезка с вектором Бюргерса \mathbf{b}_3 , замыкающего дислокационные петли с векторами Бюргерса \mathbf{b}_1 и \mathbf{b}_2 .

Заметим, что в процессе испарения подложки SiC распределение напряжений несоответствия в структуре кардинально меняется (ср. вставки на рис. 82,a, и рис. 82,b), и приповерхностные области толстого слоя AlN становятся растянутыми. При этом верхние отрезки Λ -образных дислокационных конфигураций, которые создают сжимающие напряжения в этих областях, частично компенсируют это растяжение. С другой

стороны, Λ -образные дислокационные конфигурации частично компенсируют и сжимающие напряжения в областях слоя AlN, прилегающих к интерфейсу, и растягивающие напряжения в испаряющейся подложке SiC. Таким образом, образование Λ -образных дислокационных конфигураций представляется энергетически выгодным на каждой стадии роста AlN на испаряющихся подложках SiC.

Предложенная теоретическая модель качественно описывает возможный процесс релаксации напряжений несоответствия в слоях AlN, выращиваемых на одновременно испаряющихся подложках SiC, путем зарождения на поверхности слоя AlN дислокационных полупетель, их скольжения по плоскостям пирамидального скольжения к интерфейсу AlN/SiC и последующей трансформацией в Λ -образные дислокационные конфигурации. Учитывая случайное распределение дислокационных источников на поверхности AlN, можно ожидать образования достаточно неоднородной дислокационной структуры, плотность которой должна уменьшаться в направлении от интерфейса AlN/SiC к поверхности слоя AlN. Наклоненные к плоскости интерфейса дислокационные отрезки с векторами Бюргерса \mathbf{b}_1 и \mathbf{b}_2 должны формировать довольно разреженные и неоднородные дислокационные сетки, приводящие к небольшим разориентировкам наклона и кручения в зависимости от типа этих отрезков. В свою очередь, дислокационные отрезки с теми же векторами Бюргерса, лежащие в плоскости интерфейса, обеспечивают частичную релаксацию напряжений несоответствия вблизи интерфейса, а верхние дислокационные отрезки с вектором Бюргерса \mathbf{b}_3 делают то же самое как вблизи интерфейса в слое AlN, так и в удаленных от интерфейса областях этого слоя.

5.4 Выводы

Удаление подложек SiC в одном процессе с выращиванием на них монокристаллических слоев AlN позволяет предотвратить растрескивание этих слоев. Полученные пластины AlN имеют хорошую сплошность при субмиллиметровой толщине и представляют собой модельный объект для изучения распределения дислокаций вблизи интерфейса.

Рентгеновские топограммы и кривые дифракционного отражения свидетельствуют о том, что в слоях AlN на подложках SiC формируется разориентированная дислокационная структура, которой не свойственно преобладающее количество вертикальных прорастающих дислокаций преимущественно краевого типа как в пленках GaN, потому что островковый механизм роста слоев AlN не является основным. Установленные характеристики такой структуры — это разориентация плоскостей решетки (τ) и менее заметная деформация (ϵ), соответственно на уровне $\tau \sim 1 - 2$ угл. мин. и $\epsilon \approx 5 \times 10^{-4}$.

Подавление растрескивания тонких слоев AlN при остывании структур позволяет обнаружить, что как в тонких слоях (≤ 1 мкм), так и в объемных (≥ 10 мкм) кристаллах плотность дислокаций винтового и смешанного типа на несколько порядков ниже, чем в пленках GaN.

Процесс релаксации напряжений несоответствия в слоях AlN, выращиваемых на испаряющихся подложках SiC, может происходить путем зарождения на поверхности слоя AlN дислокационных полупетель и их скольжения к интерфейсу AlN/SiC по плоскостям пирамидального скольжения; на конечной стадии релаксации в слое AlN формируются неоднородные по плотности дислокационные сетки, распределенные по толщине.

Вышеперечисленные закономерности могут быть нарушены из-за неоднородной скорости испарения подложки SiC. Обусловленные испарением источники дислокаций, в частности микропоры, формируются на периферии образцов, не нарушая сплошности их центральной части.

6. Заключение

К началу данной работы метод фазово-контрастного изображения на просвет в синхротронном излучении (СИ), разработанный и продемонстрированный в 1995 г., уже около пяти лет успешно применялся для исследования различных материалов. Метод получил распространение и популярность повсюду в мире. Это объясняется увеличением числа источников СИ третьего поколения за это время и практической значимостью метода, особенно для биологии при неразрушающем исследовании мягких тканей живых организмов. Однако по его использованию для изучения микропор было сделано сравнительно мало работ. Возможности фазово-контрастного изображения для количественного анализа микропор размером от долей микрона до нескольких микрон в объеме технически важных монокристаллов еще ни разу не были предметом детального изучения. Данная работа восполнила этот пробел.

Вместе с распространением шел процесс адаптации метода к условиям, сложившимся на источниках СИ умеренной яркости. Особенностью станций, открытых для его использования, стало устранение монохроматора ради увеличения потока и достижения высокого пространственного и временного разрешения. В результате метод, исходно созданный для количественного определения параметров микрообъектов, столкнулся с серьезными проблемами при решении обратной задачи. Вместо прямых методов ее решения, в настоящем исследовании разработан подход на основе компьютерной симуляции изображений с использованием упрощенной модели объекта, который можно применять как в монохроматическом излучении, так и пучке СИ с относительно большой шириной спектра. Следует ожидать дальнейшего использования данного подхода в области изучения широкого класса материалов с первичными порами.

В полихроматическом СИ методы фазово-контрастного и рентгенотопографического изображения можно использовать совместно при помощи сравнительно простого экспериментального оборудования. В данной работе сочетание методов послужило основанием для решения ряда задач, нацеленных на повышение структурного совершенства монокристаллов карбида кремния (SiC). Были обнаружены и объяснены новые эффекты: реакции между дислокациями с полыми ядрами (микротрубками), неустойчивость формы и размеров их сечений, взаимодействие микротрубок между собой и с другими дефектами структуры. Показано, что эти эффекты играют важную роль в процессах эволюции дислокационной структуры в растущих монокристаллах SiC. Определены условия, приводящие к уменьшению плотности микротрубок путем их постепенного зарастания.

Среди решенных задач следует отметить вклад в проблему получения высоко-легированных политипно-однородных кристаллов SiC большого диаметра. В связи с ней изучены закономерности образования пор по границам включений инородных политипов и роль микротрубок в формировании и росте пор. Прямыми наблюдениями показано, что зарастание включений приводит к полному закрытию пор. Экспериментально продемонстрировано структурное совершенство монокристаллов SiC при устойчивом росте основного политипа.

Изучение свойств микропор актуально не только для традиционных технологий, но и в связи с развитием новых методов получения монокристаллов SiC. В настоящей работе исследованы кристаллы, выращенные в условиях осевого градиента температуры и радиального теплового поля, которое обеспечивает свободное распространение слитка за пределы контура кристалла-затравки. Установлены закономерности дефектообразования в таких кристаллах. В частности, подавление включений инородных политипов создает условия, достаточные для снижения плотности дислокаций и микротрубок за пределами сектора грани базиса. Необходимым условием сохранения низкой плот-

ности дефектов в течение последующего осевого роста является полнотипная однородность.

За последние годы кристаллические подложки из нитрида алюминия (AlN), предназначенные для производства голубых светодиодов, стали коммерческим продуктом. Подложки диаметром до двух дюймов представлены на мировом рынке, но по очень высокой цене. Путь к снижению стоимости подложек лежит через увеличение их площади посредством выращивания кристаллов AlN на подложках SiC. В данной работе проведено исследование дислокационной структуры, которая формируется в результате релаксации напряжений несоответствия на интерфейсе AlN–SiC. Полученные данные свидетельствуют о том, что с расстоянием от интерфейса дислокации формируют мозаичную структуру с разориентацией плоскостей решетки порядка нескольких угловых минут и относительно слабой деформацией ($\sim 5 \times 10^{-4}$). По сравнению с пленками GaN на инородных подложках, плотность дислокаций в слоях AlN на 4–5 порядков ниже.

Проведенное исследование доказало эффективность метода фазово-контрастного изображения на просвет в СИ для изучения реальной структуры монокристаллов, которые находят важное практическое применение в электронной промышленности и специальной технике. Для наиболее эффективно использования метода требуется высоко-когерентное синхротронное излучение большой яркости. Повсюду в мире рентгеновское фазово-контрастное изображение является одним из приоритетных направлений при создании и модернизации современных источников СИ.

В работе получены следующие основные результаты

1. Разработан метод компьютерного моделирования фазово-контрастных изображений для определения размеров сечений микропор в объеме монокристалла. Метод позволяет использовать пучок СИ с относительно большой шириной спектра наряду с монохроматическим излучением.
2. Путем моделирования изображений дислокационных микротрубок в монокристаллах карбида кремния выявлены неизвестные ранее морфологические особенности, в частности изменения формы и размеров их сечений, которые получили объяснение в построении моделей образования трубок и реакций между содержащимися в них дислокациями.
3. Обнаружен эффект образования пор на границах включений инородных политипов SiC в результате притяжения микротрубок к границам включений. Эффект объяснен взаимодействием поля упругой деформации включения с дислокациями внутри трубок. Показано, что в условиях устойчивого роста основного политипа SiC происходит закрытие пор и снижение плотности дефектов кристаллической структуры.
4. Установлено, что процессы эволюции дислокаций в политипно-однородных кристаллах SiC протекают при взаимодействии микротрубок между собой и с дислокациями со сплошным ядром; уменьшение размеров сечений в результате реакций приводит к постепенному зарастанию микротрубок.
5. Определены условия получения качественных кристаллов SiC методом свободного распространения за пределы контура кристалла-затравки в условиях осевого и бокового градиентов температуры. Показано, что снижение плотности дислокаций и микротрубок за пределами сектора грани базиса происходит при условии отсутствия включений паразитных политипов.
6. Рентгеновскими исследованиями специальных модельных систем — слоев нитрида алюминия без опоры на подложки, полученных испарением под-

ложки карбида кремния, — установлено, что в результате релаксации напряжений несоответствия периодов решеток AlN и SiC формируется мозаичная дислокационная структура, для которой характерны разориентация ($\sim 1\text{--}2$ угл. мин.) и менее заметная деформация ($\sim 5 \times 10^{-4}$). Принципиальное отличие слоев AlN от пленок GaN состоит в снижении плотности прорастающих дислокаций на 4–5 порядков, обусловленном тем, что островковый механизм роста AlN на подложках SiC не является основным.

Изложенные выше основные результаты позволяют сделать заключение, что основная цель работы достигнута: изучены процессы образования, взаимодействия и эволюции микропор и дефектов кристаллической структуры в объемных монокристаллах SiC путем количественного анализа фазово-контрастных изображений и рентгеновских топограмм.

Список цитируемой литературы

- [1] Лебедев А., Сбруев С. SiC-электроника: прошлое, настоящее, будущее // Электроника: наука, технология, бизнес. 2006. N 5. С. 28–41.
- [2] Kimoto T., Yonezawa Y. Current status and perspectives of ultrahigh-voltage SiC power devices // Mat. Sci. Semicon. Proc. 2018. T. 78. С. 43–56.
- [3] Лучинин В., Таиров Ю. Отечественный полупроводниковый карбид кремния: шаг к паритету // Современная электроника. 2009. N 7. С. 12–15.
- [4] Bonse U., Beckmann F. X-ray imaging with phase contrast // AIP Conf. Proc. 2010. V. 1236. N 1. P. 189–194.
- [5] Лидер В.В., Ковальчук М.В. Методы рентгеновского фазового контраста // Кристаллография. 2013. Т. 58. N 6. С. 764–784.
- [6] Endrizzi M. X-ray phase-contrast imaging // Nucl. Instrum. Meth. A. 2018. V. 878. P. 88–98.
- [7] Zdora M.-C. State of the art of X-ray speckle-based phase-contrast and dark-field imaging // J. Imaging. 2018. V. 4. N 5. P. 1–36.
- [8] Верма А., Кришна П. Полиморфизм и политипизм в кристаллах // Москва: Мир, 1969. [Verma A., Krishna P. Polymorphism and polytypism in crystals // NY: Wiley, 1966.]
- [9] Takasu S., Shimanuki S. Tunnel-like defects of flux grown magnetic garnets // J. Cryst. Growth. 1974. V. 24–25. P. 641–645.
- [10] Hawley M., Raistrick I.D., Beery J.G., Houlton R.J. Growth mechanism of sputtered films of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ studied by scanning tunneling microscopy // Science. 1991. V. 25. N 5001. P. 1587–1589.
- [11] Qian W., Rohrer G.S., Skowronski M. Open-core screw dislocations in GaN epilayers observed by scanning force microscopy and high-resolution transmission electron microscopy // Appl. Phys. Lett. 1998. V. 67. N 16. P. 2284–2286.
- [12] Valcheva E., Paskova T., Monemar B. Nanopipes and their relationship to the growth mode in thick HVPE-GaN layers // J. Cryst. Growth. 2003. V. 255. N 1–2. P. 19–26.
- [13] Чернов А.А. Слоисто-спиральный рост кристаллов // УФН. 1961. Т. 73.

- N 2. C. 277–331.
- [14] Frank F.C. The influence of dislocations on crystal growth // *Disc. Farad. Soc.* 1949. V. 5. P. 48–54.
- [15] Frank F.C. Capillary equilibria of dislocated crystals // *Acta Crystallogr.* 1951. V. 4. P. 497–501.
- [16] Lely J.A. Sublimation process for manufacturing silicon carbide crystals // Patent US2854364 (A), NLX346864 (1954).
- [17] Водаков Ю.А., Мохов Е.Н. Способ получения полупроводникового карбида кремния // Патент СССР 403275 (1970).
- [18] Tairov Yu.M., Tsvetkov V.F. General principles of growing large-size single crystals of various silicon carbide polytypes // *J. Cryst. Growth.* 1981. V. 52. Part 1. P. 146–150.
- [19] Glass R.C., Kjellberg L.O., Tsvetkov V.F., Sundgren J.E., Janzén E. Structural macro-defects in 6H-SiC wafers // *J. Cryst. Growth.* 1993. V. 132. N 3–4. P. 504–512.
- [20] Krishna P., Jiang S.-S., Lang A.R. An optical and X-ray topographic study of giant screw dislocations in silicon carbide // *J. Cryst. Growth.* 1985. V. 71. N 1. P. 41–56.
- [21] Si W., Dudley M., Glass R., Tsvetkov V., Carter C. Hollow-core screw dislocations in 6H-SiC single crystals: A test of Frank's theory // *J. Electron. Mater.* 1997. V. 26. N 3. P. 128–133.
- [22] Heindl J., Dorsch W., Eckstein R., Hofmann D., Marek T., Müller St.G., Strunk H.P., Winnacker A. Formation of micropipes in SiC under kinetic aspects // *J. Cryst. Growth.* 1997. V. 179. N 3–4. P. 510–514.
- [23] Strunk H.P., Dorsch W., Heindl J. The nature of micropipes in 6H-SiC single crystals // *Adv. Eng. Mater.* 2000. V. 2. N 6. P. 386–389.
- [24] Vodakov Yu. A., Roenkov A. D., Ramm M. G., Mokhov E.N., Makarov Yu.N. Use of Ta-container for sublimation growth and doping of SiC bulk crystals and epitaxial layers // *Phys. Status Solidi B.* 1997. V. 202. N 1. P. 177–200.
- [25] Dudley M., Huang X. R., Huang W. The mechanism of micropipe nucleation at inclusions in silicon carbide // *Appl. Phys. Lett.* 1999. V. 75. N 6. P. 784–786.
- [26] Hofmann D., Bickermann M., Eckstein R., Kölbl M., Müller St.G., Schmitt E.,

- Weber A., Winnacker A. Sublimation growth of silicon carbide bulk crystals: experimental and theoretical studies on defect formation and growth rate augmentation // *J. Cryst. Growth*. 1999. V. 198-199. Part 2. P. 1005–1010.
- [27] Heindl J., Strunk H. P., Heydemann V. D., Pensl G. Micropipes: hollow tubes in Silicon Carbide // *Phys. Status Solidi A*. 1997. V. 162. N 1. P. 251–262.
- [28] Kuhr T. A., Sanchez E. K., Skowronski M. Hexagonal voids and the formation of micropipes during SiC sublimation growth // *J. Appl. Phys.* 2001. V. 89, N 8. P. 4625–4630.
- [29] Ohtani N., Katsuno M., Fujimoto T., Aigo T., Yashiro H. Surface step model for micropipe formation in SiC // *J. Cryst. Growth*. 2001. V. 226. N 2–3. P. 254–260.
- [30] Ma X. Superscrew dislocations in silicon carbide: Dissociation, aggregation, and formation // *J. Appl. Phys.* 2006. V. 99. N 6. 063513.
- [31] Liu J., Gao J., Cheng J., Yang J., Qiao G. Model for micropipe formation in 6H-SiC single crystal by sublimation method // *Mater. Lett.* 2005. V. 59. N 18. P. 2374–2377.
- [32] Liu J. L., Gao J. Q., Cheng J. K., Yang J. F., Qiao G. J. Methods for the reduction of the micropipe density in SiC single crystals // *J. Mater. Sci.* 2007. V. 42. N 15. P. 6148–6152.
- [33] Водаков Ю.А., Мохов Е.Н. Прогресс в выращивании кристаллов и изучении широкозонных полупроводниковых материалов // *ФТТ*. 1999. Т. 41. N 5. С. 822–825.
- [34] Eddy C.R. Jr., Gaskill D.K. Silicon Carbide as a platform for power electronics // *Science*. 2009. V. 324. N 5933. P. 1398–1400.
- [35] Müller St.G., Sanchez E.K., Hansen D.M., Drachev R.D., Chung G., Thomas B., Zhang J., Loboda M.J., Dudley M., Wang H., Wu F., Byrappa S., Raghothamachar B., Choi G. Volume production of high quality SiC substrates and epitaxial layers: Defect trends and device applications // *J. Cryst. Growth* 2012. V. 352. N 1. P. 39–42.
- [36] Shenai K., Dudley M., Davis R.F. Current status and emerging trends in wide bandgap (WBG) semiconductor power switching devices // *ECS J. Solid State Sc.* 2013. V. 2. N 8. P. N3055–N3063.
- [37] Augustine G., Hobgood McD., Balakrishna V., Dunne G., Hopkins R. H.

- Physical vapor transport growth and properties of SiC monocrystals of 4H polytype // *Phys. Status Solidi B*. 1997. V. 202. N 1. P. 137–148.
- [38] Huang X.R., Dudley M., Vetter W.M., Huang W., Si W., Carter C.H. Jr. Superscrew dislocation contrast on synchrotron white-beam topographs: an accurate description of the direct dislocation image // *J. Appl. Crystallogr.* 1999. V. 32. P. 516–524.
- [39] Ohtani N., Katsuno M., Tsuge H., Fujimoto T., Nakabayashi M., Yashiro H., Sawamura M., Aigo T., Hoshino T. Propagation behavior of threading dislocations during physical vapor transport growth of silicon carbide (SiC) single crystals // *J. Cryst. Growth*. 2006. V. 286. N 1. P. 55–60.
- [40] Ohtani N., Katsuno M., Tsuge H., Fujimoto T., Nakabayashi M., Yashiro H., Sawamura M., Aigo T., Hoshino T. Dislocation processes during SiC bulk crystal growth // *Microelectron Eng.* 2006. V. 83. N 1. P. 142–145.
- [41] Zhu L. N., Li H., Hu B. Q., Wu X., Chen X. L. New type of defects in SiC grown by the PVT method // *J. Phys.: Condensed Matter*. 2005. V. 17. N 10. P. L85–L91.
- [42] Ferrero S., Porro S., Giorgis F., Pirri C.F., Mandracci P., Ricciardi C., Scaltrito L., Sgorlon C., Richieri G., Merlin L. Defect characterization of 4H-SiC wafers for power electronic device applications // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2002. V. 14. N 48. P. 13397–13402.
- [43] Siche D., Rost H.-J., Doerschel J., Schulz D., Wollweber J. Evolution of domain walls in 6H- and 4H-SiC single crystals // *J. Cryst. Growth*. 2002. V. 237–239. Part 2. P. 1187–1191.
- [44] Kamata I., Tsuchida H., Jikimoto T., Izumi K. Structural transformation of screw dislocations via thick 4H-SiC epitaxial growth // *Jpn. J. Appl. Phys.* 2000. V. 39. N 12A. P. 6496–6500.
- [45] Epelbaum B.M., Hofmann D., Hecht U., Winnacker A. Micropipe and macrodefect healing in SiC crystals during liquid phase processing // *Mater. Sci. Forum*. 2001. V. 353–356. P. 307–310.
- [46] Khlebnikov I., Madangarli V.P., Khan M.A., Sudarshan T.S. Thick film SiC epitaxy for 'filling up' micropipes // *Mater. Sci. Forum*. 2001. V. 264–268. P. 167–170.
- [47] Rendakova S., Kuznetsov N., Savkina N., Rastegaeva M., Andreev A.,

- Minbaeva M., Morozov A., Dmitriev V. Silicon carbide epitaxial layers grown on SiC wafers with reduced micropipe density // Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 1998. V. 512. P. 131–136.
- [48] Dudley M., Huang X. R., Huang W. Assessment of orientation and extinction contrast contributions to the direct dislocation image // J. Phys. D: Appl. Phys. 1999. V. 32. N 10A. P. A139–A144.
- [49] Vetter W., Dudley M. X-ray topographic dislocation contrast visible in reflections orthogonal to the Burgers vectors of axial screw dislocations in hexagonal silicon carbide // J. Appl. Crystallogr. 2001. V. 34. P. 20–26.
- [50] Bowen D.K., Tanner B.K. High Resolution X-ray Diffractometry and Topography // London: Taylor & Francis, 1998. [Пер. на русск. яз.: Боуэн Д.К., Таннер Б.К. Высокораesшающая рентгеновская дифрактометрия и топография // СПб: Наука, 2002.]
- [51] Nakamura D., Yamaguchi S., Hirose Y., Tani T., Takatori K. Direct determination of Burgers vector sense and magnitude of elementary dislocations by synchrotron white X-ray topography // J. Appl. Phys. 2008. V. 103. N 1. 013510.
- [52] Nakamura D., Gunjishima I., Yamaguchi S., Ito T., Okamoto A., Kondo H., Onda S., Takatori K. Ultrahigh-quality silicon carbide single crystals // Nature. 2004. V. 430. P. 1009–1012.
- [53] Jacobson H., Yakimova R., Råback P., Syväjärvi M., Birch J., Janzén E. Lateral enlargement of silicon carbide crystals // Mater. Sci. Forum. 2002. V. 389–393. P. 39–42.
- [54] Dedulle J.M., Anikin M., Pons M., Blanquet E., Pisch A., Madar R., Bernard C. Free growth of 4H-SiC by sublimation method // Mater. Sci. Forum. 2004. V. 457–460. P. 71–74.
- [55] Mokhov E.N., Ramm M.G., Ramm M.S., M.S. Roenkov A.D., Vodakov Yu.A., Karpov S.Yu., Makarov Yu.A., Helava H. Growth of faceted free-spreading SiC bulk crystals by sublimation // Mater. Sci. Forum. 2003. V. 433–436. P. 29–32.
- [56] Jacobson H., Yakimova R., Råback P., Syväjärvi M., Henry A., Tuomi T., Janzén E. Lateral enlargement of silicon carbide crystals // J. Cryst. Growth. 2004. V. 270. N 1–2. P. 7–14.

- [57] Gabor D. A New Microscopic Principle // *Nature*. 1948. V. 161. P. 777–778.
- [58] Kohn V., Snigireva I., Snigirev A. Interferometric characterization of spatial coherence of high energy synchrotron X-rays // *Opt. Commun.* 2001. V. 198. N 4–6. P. 293–309.
- [59] Снигирев А.А., Кон В.Г., Мухамеджанов Э.Х., Снигирева И.И., Маевский А.Г., Квардаков В.В., Ковальчук М.В. Фокусировка источника и когерентное изображение микрообъекта в условиях слабой пространственной когерентности пучка синхротронного излучения // *Поверхность*. 2007. N 1. С. 3–9.
- [60] Gureyev T.E., Roberts A., Nugent K.A. Phase retrieval with the transport-of-intensity equation: matrix solution with use of Zernike polynomials // *J. Opt. Soc. Am. A*. 1995. V. 12. N 9. P. 1932–1941.
- [61] Gureyev T.E., Roberts A., Nugent K.A. Partially coherent fields, the transport-of-intensity equation, and phase uniqueness // *J. Opt. Soc. Am. A*. 1995. V. 12. N 9. P. 1942–1946.
- [62] Gureyev T.E., Nugent K.A. Phase retrieval with the transport-of-intensity equation. II. Orthogonal series solution for nonuniform illumination // *J. Opt. Soc. Am. A*. 1996. V. 13. N 8. P. 1670–1682.
- [63] Nugent K.A., Gureyev T.E., Cookson D.F., Paganin D., Barnea Z. Quantitative phase imaging using hard X-rays // *Phys. Rev. Lett.* 1996. V. 77. N 14–30. P. 2961–2964.
- [64] Kohn V.G. The method of phase retrieval of complex wavefield from two intensity measurements applicable to hard x-rays // *Physica Scripta*. 1997. V. 56. N 1. P. 14–19.
- [65] Nakajima N. Phase retrieval from Fresnel zone intensity measurements by use of Gaussian filtering // *Appl. Optics*. 1998. V. 37. N. 26. P. 6219–6226.
- [66] Cong W-X., Chen N-X., Du B-Y. Recursive algorithm for phase retrieval in the fractional Fourier transform domain // *Appl. Optics*. 1998. V. 37. N 29. P. 6906–6910.
- [67] Gureyev T.E., Wilkins S.W. On X-ray phase retrieval from polychromatic images // *Opt. Commun.* 1998. V. 147. N 4–6. P. 229–232.
- [68] Tommasini R., Löwenthal F., Balmer J.E., Weber H.P. Iterative method for phase-amplitude retrieval and its application to the problem of beam-shaping

- and apodization // *Opt. Commun.* 1998. V. 153. N 4–6. P. 339–346.
- [69] Paganin D., Nugent K.A. Noninterferometric phase imaging with partially coherent light // *Phys. Rev. Lett.* 1998. V. 80. N 12. P. 2586–2589.
- [70] Gureyev T.E., Raven C., Snigirev A., Snigireva I., Wilkins S.W. Hard x-ray quantitative non-interferometric phase-contrast microscopy // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1999. V. 32. N 5. P. 563–567.
- [71] Cheng J., Han S. On X-ray in-line Gabor holography with a partially coherent source // *Opt. Commun.* 1999. V. 172. N. 1–6. P. 17–24.
- [72] Gureyev T.E. Transport of intensity equation for beams in an arbitrary state of temporal and spatial coherence // *Optik.* 1999. V. 110. N 6. P. 263–266.
- [73] Gureyev T.E., Mayo S., Wilkins S.W., Paganin D., Stevenson A.W. Quantitative in-Line phase-contrast imaging with multienergy x-rays // *Phys. Rev. Lett.* 2001. V. 86. N 25. P. 5827–5830.
- [74] Nugent K.A., Paganin D., Gureyev T.E. A phase odyssey // *Phys. Today.* 2001. P. 27–32.
- [75] Paganin D., Mayo S.C., Gureyev T.E., Miller P.R., Wilkins S.W. Simultaneous phase and amplitude extraction from a single defocused image of a homogeneous object // *J. Microscopy.* 2002. V. 206. N 1. P. 33–40.
- [76] Mayo S.C., Miller P.R., Wilkins S.W., Davis T.J., Gao D., Gureyev T.E., Paganin D., Parry D.J., Pogany A., Stevenson A.W. Quantitative x-ray projection microscopy: phase-contrast and multi-spectral imaging // *J. Microscopy.* 2002. V. 207. N 2. P. 79–96.
- [77] Gureyev T.E., Stevenson A.W., Paganin D.M., Weitkamp T., Snigirev A., Snigireva I., Wilkins S.W. Quantitative analysis of two-component samples using in-line hard x-ray images // *J. Synchrotron Rad.* 2002. V. 9. P. 148–153.
- [78] Suzuki Y., Yagi N., Uesugi K. X-ray refraction-enhanced imaging and a method for phase retrieval for a simple object // *J. Synchrotron Rad.* 2002. V. 9. P. 160–165.
- [79] Schelokov I., Weitkamp T., Snigirev A. Reconstruction of an object phase transmission function from in-line X-ray holograms // *Opt. Commun.* 2002. V. 213. N 4–6. P. 247–258.
- [80] Hennelly B., Sheridan J.T. Fractional Fourier transform-based image

- encryption: phase retrieval algorithm // *Opt. Commun.* 2003. V. 226. N 1–6. P. 61–80.
- [81] Gureyev T.E., Pogany A., Paganin D.M., Wilkins S.W. Linear algorithms for phase retrieval in the Fresnel region // *Opt. Commun.* 2004. V. 231. N 1–6. P. 53–70.
- [82] Kohn V., Rau C., Sergienko P.M., Snigireva I., Snigirev A., Vazina A. The live lattices become visible in coherent synchrotron X-rays // *Nucl. Instr. Meth. A* 2005. V. 543. P. 306–311.
- [83] Hennelly B.M., Sheridan J.T. Generalizing, optimizing, and inventing numerical algorithms for the fractional Fourier, Fresnel, and linear canonical transforms // *JOSA A*. 2005. V. 22. N 5. P. 917–927.
- [84] Gureyev T.E., Nesterets Ya.I., Paganin D.M., Pogany A., Wilkins S.W. Linear algorithms for phase retrieval in the Fresnel region. 2. Partially coherent illumination // *Opt. Commun.* 2006. V. 259. N 2. P. 569–580.
- [85] Shioya H., Gohara K. Generalized phase retrieval algorithm based on information measures // *Opt. Commun.* 2006. V. 266. N 1. P. 88–93.
- [86] Marchesini S. A unified evaluation of iterative projection algorithms for phase retrieval // *Rev. Sci. Instrum.* 2007. V. 78. N 1. 011301.
- [87] Paganin D.M., Gureyev T.E. Phase contrast, phase retrieval and aberration balancing in shift-invariant linear imaging systems // *Opt. Commun.* 2008. V. 281. N 5. P. 965–981.
- [88] Langer M., Cloetens P., Guigay J.-P., Peyrin F. Quantitative comparison of direct phase retrieval algorithms in in-line phase tomography // *Med. Phys.* 2008. V. 35. P. 4556–4566.
- [89] Kashyap Y.S., Agrawal A., Sarkar P.S., Shukla M., Roy T., Sinha A. A variable-wavelength-based approach of phase retrieval for contrast transfer function based methods // *J. Synchrotron Rad.* 2010. V. 17. P. 799–803.
- [90] Burvall A., Lundström U., Takman P.A.C., Larsson D.H., Hertz H.M. Phase retrieval in X-ray phase-contrast imaging suitable for tomography // *Opt. Express*. 2011. V. 19. N 11. P. 10359–10376.
- [91] Weitkamp T., Haas D., Wegrzynek D., Rack A. ANKPhase: software for single-distance phase retrieval from inline X-ray phase-contrast radiographs // *J. Synchrotron Rad.* 2011. V. 18. P. 617–629.

- [92] Wilkins S.W., Nesterets Ya.I., Gureyev T.E., Mayo S.C., Pogany A., Stevenson A.W. On the evolution and relative merits of hard X-ray phase-contrast imaging methods // *Philos. T R Soc. A.* 2014. V. 372. N 2010. P. 1–19.
- [93] Diemoz P.C., Vittoria F.A., Hagen C.K., Endrizzi M., Coan P., Brun E., Wagner U.H., Rau C., Robinson I.K., Bravin A., Olivo A. Single-image phase retrieval using an edge illumination X-ray phase-contrast imaging setup // *J. Synchrotron Rad.* 2015. V. 22. P. 1072–1077.
- [94] Gureyev T.E., Nesterets Y.I., Kozlov A., Paganin D.M., Quiney H.M. On the 'unreasonable' effectiveness of transport of intensity imaging and optical deconvolution // *J. Opt. Soc. Am. A.* 2017. V. 34. N 12. P. 2251–2260.
- [95] Thompson D.A., Nesterets Y.I., Pavlov K.M., Gureyev T.E. Fast three-dimensional phase retrieval in propagation-based X-ray tomography // *J. Synchrotron Rad.* 2020. V. 26. N 3. P. 825–838.
- [96] Snigirev A., Snigireva I., Kohn V., Kuznetsov S., Schelokov I. On the possibilities of X-ray phase contrast microimaging by coherent high-energy synchrotron radiation // *Rev. Sci. Instrum.* 1995. V. 66. N 12. P. 5486–5492.
- [97] Stevenson A.W., Gureyev T.E., Paganin D. Phase-contrast X-ray imaging with synchrotron radiation for materials science applications // *Nucl. Instr. Meth. B* 2003. V. 199. P. 427–435.
- [98] Wu X., Liu H.J. A general theoretical formalism for X-ray phase contrast imaging // *X-ray Sci. Technol.* 2003. V. 11. N 1. P. 33–42.
- [99] Agliozzo S., Cloetens P. Quantification of micrometre-sized porosity in quasicrystals using coherent synchrotron radiation imaging // *J. Microscopy.* 2004. V. 216. N 1. P. 62–69.
- [100] Zabler S., Cloetens P., Guigay J.-P., Baruchel J. Optimization of phase contrast imaging using hard X-rays // *Rev. Sci. Instrum.* 2005. V. 76. N 7. 073705.
- [101] Nesterets Ya.I., Wilkins S.W., Gureyev T.E., Pogany A., Stevenson A.W. On the optimization of experimental parameters for X-ray in-line phase-contrast imaging // *Rev. Sci. Instrum.* 2005. V. 76. N 9. 093706.
- [102] Arhatari B.D., Mancuso A.P., Peele A.G., Nugent K.A. Phase contrast radiography: image modeling and optimization // *Rev. Sci. Instrum.* 2004. V. 75. N 12. P. 5271–5276.

- [103] Arhatari B.D., Nugent K.A., Peele A.G., Thornton J. Phase contrast radiography. II. Imaging of complex objects // *Rev. Sci. Instrum.* 2005. V. 76. N 11. 113704.
- [104] Nesterets Ya.I., Gureyev T.E., Pavlov K.M., Paganin D.M., Wilkins S.W. Combined analyser-based and propagation-based phase-contrast imaging of weak objects // *Opt. Commun.* 2006. V. 259. N 1. P. 19–31.
- [105] Nesterets Ya.I. On the origins of decoherence and extinction contrast in phase-contrast imaging // *Opt. Commun.* 2008. V. 281. N 4. P. 533–542.
- [106] Gureyev T.E., Nesterets Y.I., Stevenson A.W., Miller P.R., Pogany A., Wilkins S.W. Some simple rules for contrast, signal-to-noise and resolution in in-line x-ray phase-contrast imaging // *Opt. Express.* 2008. V. 16. N 5. P. 3223–3241.
- [107] Cloetens P., Pateyron-Salomé M., Buffière J.Y., Peix G., Baruchel J., Peyrin F., Schlenker M. Observation of microstructure and damage in materials by phase sensitive radiography and tomography // *J. Appl. Phys.* 1997. V. 81. N 9. P. 5878–5886.
- [108] Tsai W.L., Hsu P.C., Hwu Y., Chen C.H., Chang L.W., Je J.H., Lin H.M., Groso A., Margaritondo G. Electrochemistry: building on bubbles in metal electrodeposition // *Nature.* 2002. V. 417. P. 139.
- [109] Margaritondo G., Hwu Y., Je J.H. Synchrotron light in medical and materials science radiology // *Riv Nuovo Cimanto.* 2004. V. 27. N 7. P. 1–40.
- [110] Buffet A., Reinhart G., Schenk T., Nguyen-Thi H., Gastaldi J., Mangelinck-Noël N., Jung H., Härtwig J., Baruchel J., Billia B. Real-time and *in situ* solidification of Al-based alloys investigated by synchrotron radiation: a unique experimental set-up combining radiography and topography techniques // *Phys. Status Solidi A.* 2007. V. 204. N 8. P. 2721–2727.
- [111] Wang Y., Liu X., Im K.S., Lee W.K., Wang J., Fezzaa K., Hung D.L.S., Winkelman J.R. Ultrafast X-ray study of dense-liquid-jet flow dynamics using structure-tracking velocimetry // *Nat. Phys.* 2008. V. 4. P. 305–309.
- [112] Hung Y.C., Bennett J.A., Garcia-Pastor F.A., Di Michiel M., Buffière J.Y., Doel T.J.A., Bowen P., Withers P.J. Fatigue crack growth and load redistribution in Ti/SiC composites observed in situ // *Acta Mater.* 2009. V. 57. N 2. P. 590–599.

- [113] Herbig M., King A., Reischig P., Proudhon H., Lauridsen E.M., Marrow J., Buffière J.Y., Ludwig W. 3-D growth of a short fatigue crack within a polycrystalline microstructure studied using combined diffraction and phase-contrast X-ray tomography // *Acta Mater.* 2011. V. 59. N 2. P. 590–601.
- [114] Nguyen-Thi H., Salvo L., Mathiesen R.H., Arnberg L., Billia B., Suery M., Reinhart G. On the interest of synchrotron X-ray imaging for the study of solidification in metallic alloys // *C R Phys.* 2012. V. 13. N 3. P. 237–245.
- [115] Mayo S.C., Stevenson A.W., Wilkins S.W. In-line phase-contrast X-ray imaging and tomography for materials science // *Materials.* 2012. V. 5. N 5. P. 937–965.
- [116] Gouillart E., Toplis M.J., Grynberg J., Chopinet M.H., Sondergard E., Salvo L., Suery M., Di Michiel M., Varoquaux G. *In situ* synchrotron microtomography reveals multiple reaction pathways during soda-lime glass synthesis // *J. Am. Ceram. Soc.* 2012. V. 95. N 5. P. 1504–1507.
- [117] Kim J., Park T.-J., Kwon N., Lee D., Kim S., Kohmura Y., Ishikawa T., Kim K.-T., Curran T., Je J.H. Dendritic planarity of Purkinje cells is independent of Reelin signaling // *Brain Structure and Function.* 2015. V. 220. N 4. 2263–2273.
- [118] Kim J.T., Pyo J., Seol S.K., Je J.H. Precise placement of microbubble templates at single entity resolution // *ACS Macro Lett.* 2018. V. 7. N 10. P. 1267–1271.
- [119] Lee S.-H., Lee S.J., Lee J.S., Fezzaa K., Je J.H. Transient dynamics in drop impact on a superheated surface // *Phys. Rev. Fluids.* 2018. V. 3. N 12. 124308.
- [120] Mancini L., Reinier E., Cloetens P., Gastaldi J., Härtwig J., Schlenker M., Baruchel J. Investigation of structural defects and inhomogeneities in Al-Pd-Mn icosahedral quasicrystals by combined synchrotron X-ray topography and phase radiography // *Philos. Mag. A.* 1998. V. 78. N 5. P. 1175–1194.
- [121] Gastaldi J., Mancini L., Reinier E., Cloetens P., Ludwig W., Janot C., Baruchel J., Härtwig J., Schlenker M. The interest of X-ray imaging for the study of defects in real quasicrystals // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1999. V. 32. N 10A. P. A152–A159.
- [122] Agliozzo S., Gastaldi J., Klein H., Härtwig J., Baruchel J., Brunello E. In-

- situ study of the annealing behavior of porosity in icosahedral Al-Pd-Mn quasicrystals using third generation X-ray synchrotron radiation imaging // *Phys. Rev. B.* 2004. V. 69. N 14. 144204.
- [123] Zabler S., Riesemeier H., Fratzl P., Zaslansky P. Fresnel-propagated imaging for the study of human tooth dentin by partially coherent X-ray tomography // *Opt. Express.* 2006. V. 14. N 19. P. 8584–8597.
- [124] Cloetens P., Barrett R., Baruchel J., Guigay J.-P., Schlenker M. Phase objects in synchrotron radiation hard X-ray imaging // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1996. V. 29. N 1. P. 133–146.
- [125] Margaritondo G., Tromba G. Coherence-based edge diffraction sharpening of X-ray images: A simple model // *J. Appl. Phys.* 1999. V. 85. N 7. P. 3406–3408.
- [126] Hwu Y., Hsieh H.H., Lu M.J., Tsai W.L., Lin H.M., Goh W.C., Lai B., Je J.H., Kim C.K., Noh D.Y., Youn H.S., Tromba G., Margaritondo G. Coherence-enhanced synchrotron radiology: Refraction versus diffraction mechanisms // *J. Appl. Phys.* 1999. V. 86. N 8. P. 4613–4618.
- [127] Hwu Y., Tsai W.L., Groso A., Margaritondo G., Je J.H. Coherence-enhanced synchrotron radiology: simple theory and practical applications // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2002. V. 35. N 13. P. R105–R120.
- [128] Wilkins S. W., Gureyev T. E., Gao D., Pogany A., Stevenson A. W. Phase-contrast imaging using polychromatic hard X-rays // *Nature.* 1996. V. 384. P. 335–338.
- [129] Pogany A., Gao D., Wilkins S. W. Contrast and resolution in imaging with a microfocus X-ray source // *Rev. Sci. Instrum.* 1997. V. 68. N 7. P. 2774–2782.
- [130] Baik S., Kim H.S., Jeong M.H., Lee C.S., Je J.H., Hwu Y., Margaritondo G. International consortium on phase contrast imaging and radiology beamline at the Pohang Light Source // *Rev. Sci. Instrum.* 2004. V. 75. N 11. P. 4355–4358.
- [131] Hwu Y., Tsai W.L., Lai B., Je J.H., Fecher G.H., Bertolo M., Margaritondo G. Using photoelectron emission microscopy with hard-X-rays // *Surf. sci.* 2001. V. 480. N 3. 188-195.
- [132] Hwu Y., Tsai W.-L., Hsieh H.-H., Je J.H., Kang H.-S., Kim I.-W., Lee K.-H., Kim H.-J., Lai B., Margaritondo G. Collimation-enhanced micro-radiography

- in real-time // Nucl. Instrum. Methods A. 2001. V. 467–468. Part 2. P. 1294–1300.
- [133] Tsai W.L., Hsu P.C., Hwu Y., Chen C.H., Chang L.W., Je J.H., Margaritondo G. Real-time observation of Zn electro-deposition with high-resolution microradiology // Nucl. Instrum. Methods B. 2003. V. 199. P. 451–456.
- [134] Meuli R., Hwu Y., Je J.H., Margaritondo G. Synchrotron radiation in radiology: radiology techniques based on synchrotron sources // Eur. Radiol. 2004. V. 14. N 9. P. 1550–1560.
- [135] Hwu Y., Tsai W.L., Je J.H., Seol S.K., Kim B., Groso A., Margaritondo G., Lee K.-H., Seong J.-K. Synchrotron microangiography with no contrast agent // Phys. Med. Biol. 2004. V. 49. N 4. P. 501–508.
- [136] Hwu Y., Je J.H., Margaritondo G. Real-time radiology in the microscale // Nucl. Instrum. Methods A. 2005. V. 551. N 1. P. 108–118.
- [137] Weon B.M., Je J.H., Hwu Y., Margaritondo G. Phase contrast X-ray imaging // Int. J. Nanotechnol. 2006. V. 3. N 2/3. P. 280–297.
- [138] Tong Y., Zhang G., Li Y., Tan M., Wang W., Chen J., Hwu Y., Hsu P.-C., Je J.H., Margaritondo G., Song W., Jiang R., Jiang Z. Synchrotron microradiography study on acute lung injury of mouse caused by PM2.5 aerosols // Eur. J. Radiol. 2006. V. 58. N 2. P. 266–272.
- [139] Yoon C.Y., Sung D.J., Lee J.H., Kim A.R., Oh C.W., Je J.H., Weon B.M., Seol S.K., Pyun A., Hwu Y., Margaritondo G., Joo K.J., Yoon D.K. Imaging of renal and prostate carcinoma with refractive index radiology // Int. J. Urol. 2007. V. 14. N 2. P. 96–103.
- [140] Pyun A., Bell J.R., Won K.H., Weon B.M., Seol S.K., Je J.H., Macosko C.W. Synchrotron X-ray microtomography for 3D imaging of polymer blends // Macromolecules. 2007. V. 40. N 6. P. 2029–2035.
- [141] Hsu P.-C., Seol S.-K., Lo T.-N., Liu C.-J., Wang C.-L., Lin C.-S., Hwu Y., Chen C.H., Chang L.-W., Je J. H., Margaritondo G. Hydrogen bubbles and the growth morphology of ramified zinc by electrodeposition // J Electrochem. Soc. 2008. V. 155. N 5. P. D400–D407.
- [142] Seol S.K., Kim J.T., Je J.H., Hwu Y., Margaritondo G. Three-dimensional (3D) polypyrrole microstructures with high aspect ratios fabricated by localized electropolymerization // Macromolecules. 2008. V. 41. N 9. 3071–

3074.

- [143] Chang S., Kwon N., Kim J., Kohmura Y., Ishikawa T., Rhee C. K., Je J. H., Tsuda A. Synchrotron X-ray imaging of pulmonary alveoli in respiration in live intact mice // *Sci. Rep.-UK*. 2015. V. 5. 8760.
- [144] Dorenbos P., De Haas J. T. M., Van Eijk C. W. E. Non-proportionality in the scintillation response and the energy resolution obtainable with scintillation crystals // *IEEE T Nucl Sci*. 1995. V. 42. N 6. P. 2190–2202.
- [145] Kazimirov A., Smilgies D.-M., Shen Q., Xiao X., Hao Q., Fontes E., Bilderback D. H., Gruner S. M., Platonov Y., Martynov V. V. Multilayer X-ray optics at CHESS // *J. Synchrotron Rad*. 2006. V. 13. P. 204–210.
- [146] Rack A., Weitkamp T., Riotte M., Grigoriev D., Rack T., Helfen L., Baumbach T., Dietsch R., Holz T., Krämer M., Siewert F., Meduña M., Cloetens P., Ziegler E. Comparative study of multilayers used in monochromators for synchrotron-based coherent hard X-ray imaging // *J. Synchrotron Rad*. 2010. V. 17. P. 496–510.
- [147] Суворов Э.В. Физические основы современных методов исследования реальной структуры кристаллов // Черноголовка: 1999.
- [148] Authier A. *Dynamical Theory of X-Ray Diffraction* // Oxford: Oxford Univ. Press. 2001.
- [149] Кулипанов Г.Н., Скринский А.Н. Использование синхротронного излучения: состояние и перспективы // *УФН*. 1977. Т. 122. N 3. С. 369–418.
- [150] Tuomi T., Naukkarinen K., Rabe P. Use of synchrotron radiation in x-ray diffraction topography // *Phys. Status Solidi A*. 1974. V. 25. N 1. P. 93–106.
- [151] Hart M. Synchrotron radiation - its application to high-speed, high-resolution X-ray diffraction topography // *J. Appl. Cryst*. 1975. V. 8. P.436–444.
- [152] Suzuki C.K., Shinohara A.H., Hiramatsu C.Q., Yoshimura J.-I., Reidd J.B., Kajiwara K., Chikaura Y. High resolution X-ray Laue topography of thick quartz crystals at SPring-8 // *Nucl. Instrum. Meth. B*. 2003. V. 199. P. 85–89.
- [153] Oriwol D., Carl E.-R., Danilewsky A.N., Sylla L., Seifert W., Kittler M., Leipner H.S. Small-angle subgrain boundaries emanating from dislocation pile-ups in multicrystalline silicon studied with synchrotron white-beam X-ray topography // *Acta Mater*. 2013. V. 61. N 18. P. 6903–6910.

- [154] <https://www.naomidigitalxray.com/>
- [155] <http://www.viewworks.com/eng/main.html>
- [156] <https://www.photonicscience.com/>
- [157] Bonse U., Busch F. X-ray computed microtomography (μ CT) using synchrotron radiation (SR) // Prog. Biophys. Mol. Biol. 1996. V. 65. N 1–2. P. 133–169.
- [158] Danilewsky A.N., Rack A., Wittge J., Weitkamp T., Simon R., Riesemeier H., Baumbach T. White beam synchrotron topography using a high resolution digital X-ray imaging detector // Nucl. Instrum. Meth. B. 2008. V. 266. N 9. P. 2035–2040.
- [159] <http://www.xhuber.de/>
- [160] Miltat J., Dudley M. Projective properties of Laue topographs // J. Appl. Cryst. 1980. V. 13. P. 555–562.
- [161] Смотри <http://kohnvict.ucoz.ru/vkacl/vkACLdr.htm> для скачивания программы vkACL.jar
- [162] <http://x-server.gmca.aps.anl.gov/>
- [163] Кон В.Г. Программа расчета параметров рассеяния, используемых в методе стоячих рентгеновских волн // Кристаллография. 2006. Т. 51. N 5. С. 44–48.
- [164] <http://kohnvict.ucoz.ru/jsp/3-difpar.htm>
- [165] Raghathamachar B., Dhanaraj D., Bai J., Dudley M. Defect analysis in crystals using X-ray topography // Microsc. Res. Tech. 2006. V. 69. N 5. P. 343–358.
- [166] Lübbert D., Baumbach T., Härtwig J., Boller E., Pernot E. μ m-resolved high resolution X-ray diffraction imaging for semiconductor quality control // Nucl. Instrum. Meth. B. 2000. V. 160. N 4. P. 521–527.
- [167] Ludwig W., Cloetens P., Härtwig J., Baruchel J., Hamelin B., Bastie P. Three-dimensional imaging of crystal defects by 'topo-tomography' // J. Appl. Cryst. 2001. V. 34. P. 602–607.
- [168] Helfen L., Baumbach T., Mikulik P., Kiel D., Pernot P., Cloetens P., Baruchel J. High-resolution three-dimensional imaging of flat objects by synchrotron-radiation computed laminography // Appl. Phys. Lett. 2005. V. 86. N 7. 071915.

- [169] Kajiwara K., Kimura S., Chikaura Y. New topographic method of detecting microdefects using weak-beam topography with white X-rays // *Jap. J. Appl. Phys.* 2005. V. 44. N 6A. P. 4211–4212.
- [170] Kawado S., Taishi T., Iida S., Suzuki Y., Chikaura Y., Kajiwara K. Three-dimensional structure of dislocations in silicon determined by synchrotron white X-ray topography combined with a topo-tomographic technique // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2005. V. 38. N 10A. P. A17–A22.
- [171] Mukaide T., Kajiwara K., Noma T., Takada K. Three-dimensional visualization of the inner structure of single crystals by step-scanning white X-ray section topography // *J. Synchrotron Rad.* 2006. V. 13. P. 484–488.
- [172] Huang X.R., Black D.R., Macrander A.T., Maj J., Chen Y., Dudley M. High-geometrical-resolution imaging of dislocations in SiC using monochromatic synchrotron topography // *Appl. Phys. Lett.* 2007. V. 91. N 23. 231903.
- [173] Chen Y., Dudley M. Direct determination of dislocation sense of closed-core threading screw dislocations using synchrotron white beam X-ray topography in 4H silicon carbide // *Appl. Phys. Lett.* 2007. V. 91. N 14. 141918.
- [174] Kajiwara K., Kawado S., Iida S., Suzuki Y., Chikaura Y. Features of dislocation images reconstructed from step-scanned white X-ray section topographs // *Phys. Status Solidi A.* 2007. V. 204. N 8. P. 2682–2687.
- [175] Kvardakov V.V., Podurets K.M., Schetinkina S.A., Baruchel J., Härtwig J., Schlenker M. Study of the three-dimensional distribution of defects in crystals by synchrotron radiation diffraction tomography // *Nucl. Instrum. Meth. A.* 2007. V. 575. N 1–2. P. 140–143.
- [176] Chen Y., Dudley M., Sanchez E.K., Macmillan M.F. Simulation of grazing-incidence synchrotron white beam X-ray topographic images of micropipes in 4H-SiC and determination of their dislocation senses // *J. Electron. Mater.* 2008. V. 37. N 5. P. 713–720.
- [177] Danilewsky A. N., Wittge J., Rack A., Weitkamp T., Simon R., Baumbach T., McNally P. White beam topography of 300 mm Si wafers // *J Mater Sci: Mater Electron.* 2008. V. 19. Suppl. 1. P. S269–S272.
- [178] Kamata I., Nagano M., Tsuchida H., Chen Y., Dudley M. Investigation of character and spatial distribution of threading edge dislocations in 4H-SiC epilayers by high-resolution topography // *J. Cryst. Growth* 2009. V. 311. N

5. P. 1416–1422.
- [179] Zhang Y., Chen H., Choi G., Raghothamachar B., Dudley M., Edgar J.H., Graszka K., Tymicki E., Zhang L., Su D., Zhu Y. Nucleation mechanism of 6H-SiC polytype inclusions inside 15R-SiC crystals // *J. Electron. Mater.* 2010. V. 39. N 6. P. 799–804.
- [180] Kallinger B., Polster S., Berwian P., Friedrich J., Müller G., Danilewsky A.N., Wehrhahn A., Weber A.-D. Threading dislocations in n- and p-type 4H-SiC material analyzed by etching and synchrotron X-ray topography // *J. Cryst. Growth* 2011. V. 314. N 1. P. 21–29.
- [181] Khokhryakov A.F., Palyanov Y.N., Kupriyanov I.N., Borzdov Y.M., Sokol A.G., Härtwig J., Masiello F. Crystal growth and perfection of large octahedral synthetic diamonds // *J. Cryst. Growth* 2011. V. 317. N 1. P. 32–38.
- [182] Kluender R.T., Philip A., Meyssonier J., Baruchel J. Three-dimensional distortion measurements by section rocking curve imaging: Application to ice crystals // *Phys. Status Solidi A*. 2011. V. 208. N 11. P. 2505–2510.
- [183] Danilewsky A.N., Wittge J., Croell A., Allen D., McNally P., Vagovič P., dos Santos Rolo T., Li Z., Baumbach T., Gorostegui-Colinas E., Garagorri J., Elizalde M.R., Fossati M.C., Bowen D.K., Tanner B.K. Dislocation dynamics and slip band formation in silicon: In-situ study by X-ray diffraction imaging // *J. Cryst. Growth*. 2011. V. 318. N 1. P. 1157–1163.
- [184] Danilewsky A.N., Wittge J., Hess A., Cröll A., Rack A., Allen D., McNally P., dos Santos Rolo T., Vagovič P., Baumbach T., Garagorri J., Elizalde M. R., Tanner B. K. Real-time X-ray diffraction imaging for semiconductor wafer metrology and high temperature in situ experiments // *Phys. Status Solidi A*. 2011. V. 208. N 11. P. 2499–2504.
- [185] Wang H., Wu F., Byrappa S., Sun S., Raghothamachar B., Dudley M., Sanchez E.K., Hansen D., Drachev R., Müller S.G., Loboda M.J. Basal plane dislocation multiplication via the Hopping Frank-Read source mechanism in 4H-SiC // *Appl. Phys. Lett.* 2012. V. 100. N 17. 172105.
- [186] Hänschke D., Helfen L., Altapova V., Danilewsky A., Baumbach T. Three-dimensional imaging of dislocations by X-ray diffraction laminography // *Appl. Phys. Lett.* 2012. V. 101. N 24. 244103.

- [187] Danilewsky A., Wittge J., Kiefl K., Allen D., McNally P., Garagorri J., Elizalde M.R., Baumbach T., Tanner B.K. Crack propagation and fracture in silicon wafers under thermal stress // *J. Appl. Cryst.* 2013. V. 46. P. 849–855.
- [188] Wu F., Wang H., Byrappa S., Raghobhamachar B., Dudley M., Wu P., Xu X., Zwieback I. Characterization and formation mechanism of six pointed star-type stacking faults in 4H-SiC // *J. Electron. Mater.* 2013. V. 42. N 5. P. 787–793.
- [189] Wang H., Sun S., Dudley M., Byrappa S., Wu F., Raghobhamachar B., Chung G., Sanchez E.K., Müller S.G., Hansen D., Loboda M.J. Quantitative comparison between dislocation densities in offcut 4H-SiC wafers measured using synchrotron X-ray topography and molten KOH etching // *J. Electron. Mater.* 2013. V. 42. N 5. P. 794–798.
- [190] Baruchel J., Di Michiel M., Lafford T., Lhuissier P., Meyssonier J., Nguyen-Thi H., Philip A., Pernot P., Salvo L., Scheel M. Synchrotron X-ray imaging for crystal growth studies // *C. R. Physique.* 2013. V. 14. N 2–3. P. 208–220.
- [191] Sintonen S., Rudziński M., Suihkonen S., Jussila H., Knetzger M., Meissner E., Danilewsky A., Tuomi T.O., Lipsanen H. Synchrotron radiation X-ray topography and defect selective etching analysis of threading dislocations in GaN // *J. Appl. Phys.* 2014. V. 116. N 8. 083504.
- [192] Wang H., Wu F., Byrappa S., Raghobhamachar B., Dudley M., Wu P., Zwieback I., Souzis A., Ruland G., Anderson T. Synchrotron topography studies of the operation of double-ended Frank–Read partial dislocation sources in 4H-SiC // *J. Cryst. Growth* 2014. V. 401. P. 423–430.
- [193] Philip A., Capolo L., Meyssoniera J., Baruchel J. Inception and movement of a 'subgrain boundary precursor' in ice under an applied stress, observed by X-ray synchrotron radiation Bragg imaging // *J. Appl. Cryst.* 2015. V. 48. P. 672–678.
- [194] Riberi-Béridot T., Mangelinck-Noël N., Tandjaoui A., Reinhart G., Billia B., Lafford T., Baruchel J., Barrallier L. On the impact of twinning on the formation of the grain structure of multi-crystalline silicon for photovoltaic applications during directional solidification // *J. Cryst. Growth* 2015. V. 418. P. 38–44.
- [195] Moore M. Synchrotron X-ray topography // *Radiat. Phys. Chem.* 1995. V.

45. N 3. P. 427–444.
- [196] Baruchel J., Härtwig. J. X-Ray topography // Encyclopaedia of Condensed Matter Physics. Amsterdam: Elsevier, 2005.
- [197] Buffiere J.-Y., Baruchel J. Hard X-Ray synchrotron imaging techniques and applications // In: Synchrotron Radiation: Basics, Methods and Applications. Eds: S. Mobilio, F. Boscherini, C. Meneghini. Berlin: Springer-Verlag, 2015. P. 389–408.
- [198] Cloetens P., Guigay J. P., De Martino C., Baruchel J. Fractional Talbot imaging of phase gratings with hard x-rays // Optics Letters. 1997. V. 22. N 14. P. 1059–1061.
- [199] Yi J.M., Je J.H., Chu Y.S., Cullen W.G., You H. Novel X-ray diffraction microscopy technique for measuring textured grains of thin-films // Nucl. Instrum. Meth. A. 2005. V. 551. N 1. P. 157–161.
- [200] Yi J.M., Chu Y.S., Argunova T.S., Je J.H. Analytic determination of the three-dimensional distribution of dislocations using synchrotron X-ray topography // J. Appl. Cryst. 2006. V. 39. P. 106–108.
- [201] Yi J.M., Je J.H., Chu Y.S., Zhong Y., Hwu Y., Margaritondo G. Bright-field imaging of lattice distortions using X-rays // Appl. Phys. Lett. 2006. V. 89. N 7. 074103.
- [202] Аргунова Т.С., Гуткин М.Ю., Щербачев К.Д., Казарова О.П., Мохов Е.Н., Дже Д.Х. Распределение дислокаций в кристаллах AlN при выращивании на испаряемых подложках SiC // Научно-технический вестник информационных технологий, механики и оптики. 2016. Т. 16. P. 1038–1047.
- [203] Argunova T.S., Yi J.M., Jung J.W., Je J.H., Sorokin L.M., Gutkin M.Yu., Belyakova E.I., Kostina L.S., Zabrodskii A.G., Abrosimov N.V. White X-ray beam topography and radiography of $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ crystals bonded to silicon // Phys. Status Solidi A. 2007. V. 204. N 8. P. 2669–2674.
- [204] Argunova T.S., Jung J-W., Je J-H., Abrosimov N.V., Grekhov I.V., Kostina L.S., Rozhkov A.V., Sorokin L.M., Zabrodskii A.G. Investigation of dislocations in Czochralski grown $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ single crystals // J. Phys. D: Appl. Phys. 2009. V. 42. N 8. 085404.
- [205] Аргунова Т.С., Забродский А.Г., Сорокин Л.М., Абросимов Н.В.,

- Дже Дж.Х. Использование белого синхротронного излучения для исследования дефектов структуры в монокристаллах $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ // Кристаллография. 2011. Т. 56. N 5. P. 868–875.
- [206] Argunova T.S., Je J.H., Kostina L.S., Rozhkov A.V., Grekhov I.V. $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ single crystals grown by the Czochralski method: defects and electrical properties // Acta Phys. Pol. A. 2013. V. 124. N 2. P. 239–243.
- [207] Rejmánková-Pernot P., Cloetens P., Baruchel J., Guigay J.-P., Moretti P. Phase retrieval by combined Bragg and Fresnel x-ray diffraction imaging // Phys. Rev. Lett. 1998. V. 81. N 16. P. 3435–3438.
- [208] Baruchel J., Cloetens P., Härtwig J., Schlenker M. Diffraction topography using white x-ray beams with low effective divergence // Phil. Trans. R. Soc. Lond. A. 1999. V. 357. N 1761. P. 2741–2754.
- [209] Baruchel J., Cloetens P., Härtwig J., Ludwig W., Mancini L., Pernot P., Schlenker M. Phase imaging using highly coherent x-rays: radiography, tomography, diffraction topography // J. Synchrotron Rad. 2000. V. 7. P. 196–201.
- [210] Nguyen-Thi H., Gastaldi J., Schenk T., Reinhart G., Mangelinck-Noel N., Cristiglio V., Billia B., Grushko B., Härtwig J., Klein H., Baruchel J. In situ and real-time probing of quasicrystal solidification dynamics by synchrotron imaging // Phys Rev. E. 2006. V. 74. P. 031605(1–6).
- [211] Ludwig W., Lauridsen E.M., Schmidt S., Poulsenc H.F., Baruchel J. High-resolution three-dimensional mapping of individual grains in polycrystals by topotomography // J. Appl. Cryst. 2007. V. 40. P. 905–911.
- [212] Shechtman D., Blech I., Gratias D., Cahn J.W. Metallic phase with long-range orientational order and no translational symmetry // Phys. Rev. Lett. 1984. V. 53. N 20. P. 1951–1954.
- [213] Mancini L., Janot C., Loreto L., Farinato R., Gastaldi J., Baruchel J. Hierarchical porosity in real quasicrystals // Philos. Mag. Lett. 1998. V.78. N 2. P. 159–167.
- [214] Gastaldi J., Agliozzo S., Létoublon A., Wang J., Mancini L., Klein H., Härtwig J., Baruchel J., Fisher I.R., Sato T., Tsai A.P., de Boissieu A.M. Degree of structural perfection of icosahedral quasicrystalline grains investigated by synchrotron X-ray diffractometry and imaging techniques //

- Philos. Mag. 2003. V. 83. N 1. P. 1–29.
- [215] Tandjaoui A., Mangelinck-Noël N., Reinhart G., Furter J.-J., Billia B., Lafford T., Baruchel J., Guichard X. Real time observation of the directional solidification of multicrystalline silicon: X-ray imaging characterization // Energy Procedia. 2012. V. 27. P. 82–87.
- [216] Tandjaoui A., Mangelinck-Noël N., Reinhart G., Billia B., Lafford T., Baruchel J. Investigation of grain boundary grooves at the solid liquid interface during directional solidification of multi-crystalline silicon: in situ characterization by X-ray imaging // J. Cryst. Growth. 2013. V. 377. P. 203–211.
- [217] Tandjaoui A., Mangelinck-Noël N., Reinhart G., Billia B., Guichard X. Twinning occurrence and grain competition in multi-crystalline silicon during solidification // C. R. Physique. 2013. V. 14. N 2-3. P. 141-148.
- [218] Labiche J.-C., Mathon O., Pascarelli S., Newton M.A., Ferre G.G., Curfs C., Vaughan G., Homs A., Carreiras D.F. The fast read out low noise camera as a versatile x-ray detector for time resolved dispersive extended x-ray absorption fine structure and diffraction studies of dynamic problems in materials science, chemistry, and catalysis// Rev. Sci. Instrum. 2007. V. 78. N 9. P. 091301(1–11).
- [219] Duffar T. Comprehensive review on grain and twin structures in bulk photovoltaic silicon // Recent Res. Dev. Cryst. Growth. 2010. V.5. P. 61–113.
- [220] Van Loan C. Computational frameworks for the Fast Fourier Transform // Philadelphia: SIAM, 1992.
- [221] <http://imagej.nih.gov/ij/download.html>
- [222] Stock S.R. Recent advances in X-ray microtomography applied to materials // Int. Mater. Rev. 2008. V. 53. P. 129–180.
- [223] Takahashi J., Kanaya M., Fujiwara Y. Sublimation growth of SiC single crystalline ingots on faces perpendicular to the (0001) basal plane // J. Cryst. Growth. 1994. V. 135. N 1–2. P. 61–70.
- [224] Takahashi J., Ohtani N., Kanaya M. Structural defects in α -SiC single crystals grown by the modified-Lely method // J. Cryst. Growth. 1996. V. 167. N 3–4. P. 596–606.
- [225] Takahashi J., Ohtani N., Katsuno M., Shinoyama S. Sublimation growth of

- 6H- and 4H-SiC single crystals in the $[1\bar{1}00]$ and $[11\bar{2}0]$ directions // J. Cryst. Growth. 1997. V. 181. N 3. P. 229–240.
- [226] Takahashi J., Ohtani N. Modified-Lely SiC crystals grown in $[1\bar{1}00]$ and $[11\bar{2}0]$ directions // Phys. Status Solidi B. 1997. V. 202. N 1. P. 163–175.
- [227] Ohtani N., Katsuno M., Fujimoto T. Reduction of stacking fault density during SiC bulk crystal growth in the $[11\bar{2}0]$ direction. Jpn. J. Appl. Phys. 2003. V. 42. Part 2. N 38. P. L 277–L 279.
- [228] Nishiguchi T., Masuda Y., Ohshima S., Nishino S. Reduction of hollow defects in 6H-SiC single crystals grown by sublimation boules growth technique on $(11\bar{2}0)$ 6H-SiC substrates. Jpn. J. Appl. Phys. 2004. V. 43. Part 1. N 4A. P. 1293–1299.
- [229] Saparin G.V., Obyden S.K., Mokhov E.N., Roenkov A.D., Ahmedov B.A. Polytype transformations in SiC-epitaxial layers: the color cathodoluminescence-SEM studies // Scanning. 1994. V. 16. N 1. P. 21–25.
- [230] Saparin G.V., Obyden S.K., Ivannikov P.V., Shishkin E.B., Mokhov E.N., Roenkov A.D., Hofmann D.H. Three-dimensional studies of SiC polytype transformations // Scanning. 1997. V. 19. N 4. P. 269–274.
- [231] Мохов Е.Н., Сапарин Г.В., Обыден С.К., Иванников П.В. Изучение влияния ориентации подложки на трансформацию политипов эпитаксиальных слоев SiC методом цветной катодолюминесценции в РЭМ // Поверхность. 2001. N 8. С. 45–50.
- [232] Мохов Е.Н., Нагальюк С.С. Структурное совершенство кристаллов SiC, выращенных на профилированных затравках методом сублимации // Письма в ЖТФ. 2011. Т.37. N 21. С. 25–32.
- [233] Mokhov E.N., Nagalyuk S.S. Structural perfection of Silicon Carbide crystals grown on profiled seeds by sublimation method // Mater. Sci. Forum. 2013. Vol. 740–742. P. 60–64.
- [234] Powell J.A., Neudeck P.G., Trunek A.J., Beheim G.M., Matus L.G., Hoffman R.W., Jr., Keys L.J. Growth of step-free surfaces on device-size (0001)-SiC mesas // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 77. N 10. P. 1499–1451.
- [235] Bassim N.D., Twigg M.E., Mastro M.A., Eddy C.R. Jr., Zega T.J., Henry R.L., Culbertson J.C., Holm R.T., Neudeck P., Powell J.A., Trunek A.J.

- Dislocations in III-nitride films grown on 4H-SiC mesas with and without surface steps // *J. Cryst. Growth*. 2007. V. 304. N 1. P. 103–107.
- [236] Srolovitz D.J., Sridhar N., Hirth J.P., Cahn J.W. Shape of hollow dislocation cores: Anisotropic surface energy and elastic effects // *Scripta Mater*. 1998. V. 39. N 4–5. P. 379–387.
- [237] Hirth J.P. Dislocations within elliptical holes // *Acta Mater*. 1999. V. 47. N 1. P. 1–4.
- [238] Ohsato H., Kato T., Okuda T. Screw and edge dislocations-induced internal strain around micropipes of 6H-SiC single crystals // *Mat. Sci. Semicon. Proc*. 2001. V. 4. N 6. P. 483–487.
- [239] Ma X., Parker M., Sudarshan T.S. Nondestructive defect delineation in SiC wafers based on an optical stress technique // *Appl. Phys. Lett*. 2002. V. 80. N 18. P. 3298–3300.
- [240] Heindl J., Dorsch W., Strunk H.P., Müller St.G., Eckstein R., Hofmann D., Winnacker A. Dislocation content of micropipes in SiC // *Phys. Rev. Lett*. 1998. V. 80. P. 740–741.
- [241] Strunk H.P. Edge dislocations may cause growth spirals // *J. Cryst. Growth*. 1996. V. 160. N 1–2. P. 184–185.
- [242] Gutkin M.Yu., Sheinerman A.G. Elastic interaction of micropipes in crystals // *Phys. Status Solidi B*. 2002. Vol. 231. No. 2. P. 356–372.
- [243] Tymicki E., Graszka K., Diduszko R., Bożek R., Gała M. Initial stages of SiC crystal growth by PVT method // *Cryst. Res. Technol*. 2007. V. 42. N 12. P. 1232–1236.
- [244] Wu P., Yoganathan M., Zwieback I. Defect evolution during growth of SiC crystals // *J. Cryst. Growth*. 2008. V. 310. N 7–9. P. 1804–1809.
- [245] Epelbaum B.M., Hofmann D. On the mechanisms of micropipe and macrodefect transformation in SiC during liquid phase treatment // *J. Cryst Growth*. 2001. V. 225. N 1. P. 1–5.
- [246] Шейнерман А.Г., Гуткин М.Ю. Упругие поля винтовой супердислокации с полым ядром (трубки), перпендикулярной свободной поверхности кристалла // *ФТТ*. 2003. Т. 45. N 9. P. 1614–1620.
- [247] Gutkin M.Yu., Sheinerman A.G. Split and sealing of dislocated pipes at the front of a growing crystal // *Phys. Status Solidi B*. 2004. V. 241. N 8. P.

1810–1826.

- [248] Gutkin M.Yu., Sheinerman A.G. Dislocated micro- and nanopipes with surface steps // *Phys. Status Solidi B*. 2004. V. 241. N. 4. P. 797–817.
- [249] Шейнерман А.Г. Дислокационные модели релаксации напряжений и разрушения в наноструктурных и пористых твердых телах: дис. ... доктора физико-математических наук: 01.02.04, 01.04.07: защищена 26.03.2009; утв. 09.10.2009.
- [250] Wang Y., Ali G., Mikhov M., Vaidyanathan V., Skromme B., Raghothamachar B., Dudley M. Correlation between morphological defects, electron beam-induced current imaging, and the electrical properties of 4H-SiC Schottky diodes // *J. Appl. Phys.* 2005. V. 97. N 1. 013540(1–10).
- [251] Chernov A.A. Formation of crystals in solutions // *Contemp. Phys.* 1989. V. 30. P. 251–276.
- [252] Bahng W., Kitou Y., Nishizawa S., Yamaguchi H., Nasir Khan M., Oyanagi N., Nishino S., Arai K. Rapid enlargement of SiC single crystal using a cone-shaped platform // *J. Cryst. Growth*. 2000. V. 209. N 4. P. 767–772.
- [253] Herro Z.G., Epelbaum B.M., Bickermann M., Masri P., Winnacker A. Effective increase of single-crystalline yield using PVT growth of SiC by tailoring of temperature gradient // *J. Cryst. Growth*. 2004. V. 262. N 1–4. P. 105–112.
- [254] Lang A.R. In: *Diffraction and imaging techniques in material science*. Eds. Amelinckx S., Gevers R., Van-Landuyt J. 1978. V. 2. North-Holland Publishing Company: Amsterdam; Пер. на русск. яз.: А.Р. Лэнг. Рентгеновская топография — методы и интерпретация // В книге: *Дифракционные и микроскопические методы в материаловедении*. Под ред. Амелинкса С., Геверса Р., Ланде Д.В. Металлургия: Москва 1984. С. 364–446.
- [255] Nikolaev A.E., Ivantsov V.A., Rendakova S.V., Blashenkov M.N., Dmitriev V.A. SiC liquid-phase epitaxy on patterned substrates // *J. Cryst. Growth*. 1996. V. 16. N 1–4. P. 607–611.
- [256] Ha S., Nuhfer N.T., Rohrer G.S., De Graef M., Skowronski M. Identification of prismatic slip bands in 4H SiC boules grown by physical vapor transport // *J. Electron. Mater.* 2000. V. 29. N 7. P. L5–L8.

- [257] Ghoshtagore R.N., Coble R.L. Self-diffusion in silicon carbide // Phys. Rev. 1966. V. 143. P. 623–626.
- [258] Таиров Ю.М., Цветков В.Ф. Полупроводниковые соединения AIVBIV // В книге: Справочник по электротехническим материалам. Под ред. Корицкий Ю.В., Пасынков В.В., Тареев Б.М. Атомиздат: Ленинград. 1988. Т. 3. С. 446–472.
- [259] Dundurs J. Elastic interaction of dislocations with inhomogeneities // In: Mathematical Theory of Dislocations. Ed: T. Mura. NY: ASME, 1969. P. 70–115.
- [260] Леммлейн Г.Г. Секториальное строение кристалла // В книге: Морфология и генезис кристаллов. Под ред. Шубников А.В. и др. Наука: Москва. 1973. С. 107–132.
- [261] Fini P., Zhao L., Moran B., Hansen M., Marchand H., Ibbetson J.P., DenBaars S.P., Mishra U.K., Speck J.S. High-quality coalescence of laterally overgrown GaN stripes on GaN/sapphire seed layers // Appl. Phys. Lett. 1999. V. 75. N 12. P. 1706–1708.
- [262] Imer B.M., Wu F., DenBaars S.P., Speck J.S. Improved quality $(11\bar{2}0)$ *a*-plane GaN with sidewall lateral epitaxial overgrowth // Appl. Phys. Lett. 2006 V. 88. N 6. 061908 (1–3).
- [263] Craven M.D., Lim S.H., Wu F., Speck J.S., DenBaars S.P. Structural characterization of nonpolar (110) *a*-plane GaN thin films grown on (102) *r*-plane sapphire // Appl. Phys. Lett. 2002. V. 81. N 3. P. 469–471.
- [264] Craven M.D., Chakraborty A., Imer B., Wu F., Keller S., Mishra U.K., Speck J.S., DenBaars S.P. Structural and electrical characterization of *a*-plane GaN grown on *a*-plane SiC // Phys. Status Solidi C. 2003. V. 0. N. 7. P. 2132–2135.
- [265] Keller S., Li H., Laurent M., Hu Y., Pfaff N., Lu J., Brown D.F., Fichtenbaum N.A., Speck J.S., DenBaars S.P., Mishra U.K. Recent progress in metal-organic chemical vapor deposition of $(000\bar{1})$ N-polar group-III nitrides // Semicond. Sci. Technol. 2014. V. 29. P. 113001(1–47).
- [266] Кукушкин С.А., Осипов А.В. Новый метод твердофазной эпитаксии карбида кремния на кремнии: модель и эксперимент // ФТТ. 2008. Т. 50. N 7. С. 1188–1195.
- [267] Kukushkin S.A., Osipov A.V., Bessolov V.N., Medvedev B.K., Nevolin V.K.,

- Tcarik K.A. Substrates for epitaxy of Gallium Nitride: new materials and techniques // *Rev. Adv. Mater. Sci.* 2008. V. 17. N. 1/2. P. 1–32.
- [268] Кукушкин С.А., Осипов А.В., Жуков С.Г., Заварин Е.Е., Лундин В.В., Сеницын М.А., Рожавская М.М., Цацульников А.Ф., Трошков С.И., Феокистов Н.А. Светодиод на основе III-нитридов на кремниевой подложке с эпитаксиальным нанослоем карбида кремния // *ПЖТФ*. 2012. Т. 38. N 6. С. 90–95.
- [269] Kukushkin S.A., Osipov A.V. A new method for the synthesis of epitaxial layers of silicon carbide on silicon owing to formation of dilatation dipoles. *J. Appl. Phys.* 2013. V. 113. N 2. P. 024909(1–7).
- [270] Кукушкин С.А., Осипов А.В., Феокистов Н.А. Синтез эпитаксиальных пленок карбида кремния методом замещения атомов в кристаллической решетке кремния // *ФТТ*. 2014. Т. 56. N 8. С. 1457–1485.
- [271] Kukushkin S.A., Osipov A.V. Theory and practice of SiC growth on Si and its applications to wide-gap semiconductor films // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2014. V. 47. N 31. P. 313001(1–41).
- [272] Brandt O., Muralidharan R., Waltereit P., Thamm A., Trampert A., von Kiedrowski H., Ploog K.H. Critical issues for the growth of high-quality (Al,Ga)N/GaN and GaN/(In,Ga)N heterostructures on SiC(0001) by molecular-beam epitaxy // *Appl. Phys. Lett.* 1999. V. 75. N 25. P 4019–4021.
- [273] Kyutt R.N., Ratnikov V.V., Mosina G.N., Shcheglov M.P. Structural perfection of GaN epitaxial layers according to x-ray diffraction measurements // *Phys. Solid State.* 1999. V. 41. N 1. P. 25–31.
- [274] Lee C.D., Ramachandran V., Sagar A., Feenstra R.M., Greve D.W., Sarney W.L., Salamanca-Riba L., Look D.C., Bai S., Choyke W.J., Devaty R.P. Properties of GaN epitaxial layers grown on 6H-SiC(0001) by plasma-assisted molecular beam epitaxy // *J. Electron. Mater.* 2001. V. 30. N 3. P. 162–169.
- [275] Heying B., Wu X.H., Keller S., Li Y., Kopolnek D., Keller B.P., DenBaars S.P., Speck J.S. Role of threading dislocation structure on the x-ray diffraction peak widths in epitaxial GaN films // *Appl. Phys. Lett.* 1996. V. 68. N 5. P. 643–645.
- [276] Kaganer V.M., Brandt O., Trampert A., Ploog K.H. X-ray diffraction peak

- profiles from threading dislocations in GaN epitaxial films // *Phys. Rev. B*. 2005. V. 72. N 4–15. P. 045423(1–12).
- [277] Nagai I., Kato T., Miura T., Kamata H., Naoe K., Sanada K., Okumura H. AlN bulk single crystal growth on 6H-SiC substrates by sublimation method // *Journal of Crystal Growth*. 2010. V. 312. N 19. P. 2699–2704.
- [278] Sumathi R.R. Bulk AlN single crystal growth on foreign substrate and preparation of free-standing native seeds // *CrystEngComm*. 2013. V. 15. N 12. P. 2232–2240.
- [279] Sumathi R.R., Barz R.U., Straubinger T., Gille P. Structural and surface topography analysis of AlN single crystals grown on 6H-SiC substrates // *J. Cryst. Growth*. 2012. V. 360. P. 193–196.
- [280] Sumathi R.R., Gille P. Role of SiC substrate polarity on the growth and properties of bulk AlN single crystals // *J. Mater. Sci*. 2014. V. 25. P. 3733–3741.
- [281] Kapolnek D., Wu X.H., Heying B., Keller S., Keller B.P., Mishra U.K., DenBaars S.P., Speck J.S. Structural evolution in epitaxial metalorganic chemical vapor deposition grown GaN films on sapphire // *Appl. Phys. Lett*. 1995. V. 67. N 11. P. 1541–1543.
- [282] Вольфсон А.А. Самопроизвольное отделение слоя AlN, полученного методом сублимации, от подложки SiC-6H // *ФТП*. 2009. Т. 43. N 6. С. 847–849. пер. на англ. яз. Wolfson A.A. Spontaneous detachment of a sublimation-Grown AlN layer from a SiC-6H substrate // *Semiconductors*. 2009. V. 43. P. 818–819.
- [283] Dalmau R., Schlessler R., Rodriguez B.J., Nemanich R.J., Sitar Z. J. AlN bulk crystals grown on SiC seeds // *Cryst. Growth*. 2005. V. 281. N 1. P. 68–74.
- [284] Yamakawa M., Murata K., Iwaya M., Takeuchi T., Kamiyama S., Akasaki I., Amano H., Azuma M. Freestanding highly crystalline single crystal AlN substrates grown by a novel closed sublimation method // *Appl. Phys. Express*. 2011. V. 4. N 4. P. 045503(1–3).
- [285] Hartmann C., Albrecht M., Wollweber J., Schuppang J., Juda U., Guguschev C., Golka S., Dittmar A., Fornari R. SiC seed polarity-dependent bulk AlN growth under the influence of residual oxygen // *J. Cryst. Growth*, 2012,

- 344, 19–26.
- [286] Miltat J. White beam synchrotron radiation topography. In: Characterization of crystal growth defects by x-ray methods. Ed: Tanner B.K., Bowen D.K. NY: Plenum Press, 1980. P. 401–418.
- [287] O'Hara S., Halliwell M.A.G., Childs J.B. The optimum choice of reflexion to reveal dislocations in Gallium Arsenide by X-ray reflexion topography // J. Appl. Cryst. 1972. V. 5. P. 401.
- [288] Shulpina I.L., Argunova T.S. Detection of dislocations in strongly absorbing crystals by projection X-ray topography in back reflection // J. Phys. D: Appl. Phys. 1995. V. 28. N 4A. P. A47–A49.
- [289] Ishiji K., Kawado S., Hirai Y., Nagamachi S. Determination of observable depth of dislocations in 4H-SiC by X-ray topography in back reflection // Jap. J. Appl. Phys. 2017. V. 56. N 10. P. 106601(1–4).
- [290] Tanner B.K., Bowen D.K. Synchrotron radiation topography // Mater. Sci. Rep. 1992. V. 8. N 8. P. 369–407.
- [291] Srikant V., Speck J.S., Clarke D.R. Mosaic structure in epitaxial thin films having large lattice mismatch // J. Appl. Phys. 1997. V. 82. N 9. P. 4286–4295.
- [292] Floro J.A., Follstaedt D.M., Provencio P., Hearne S.J., Lee S.R. Misfit dislocation formation in the AlGaN/GaN heterointerface // J. Appl. Phys. 2004. V. 96. N 1. P. 7087–7094.
- [293] Miyanaga M., Mizuhara N., Fujiwara S., Shimazu M., Nakahata H., Kawase T. Evaluation of AlN single-crystal grown by sublimation method // J. Cryst. Growth. 2007. V. 300. N 1. P. 45–49.
- [294] Bickermann M., Epelbaum B.M., Filip O., Heimann P., Nagata S., Winnacker A. Structural properties of aluminum nitride bulk single crystals grown by PVT // Physica Status Solidi C. 2008. V. 5. N 6. P. 1502–1504.
- [295] Kamata H., Naoe K., Sanada K., Ichinose N. Single-crystal growth of aluminum nitride on 6H-SiC substrates by an opensystem sublimation method // J. Cryst. Growth. 2009. V. 311. N 5. P. 1291–1295.

Список публикаций по теме диссертации

1. Т. С. Аргунова, В. Г. Кон. Исследование микропор в монокристаллах методом фазово-контрастного изображения на просвет в синхротронном излучении // УФН. 2019. Т. 189. N. 6. С. 643–658;
T. S. Argunova, V. G. Kohn. Study of micropores in single crystals by in-line phase contrast imaging with synchrotron radiation // Physics – Uspekhi. 2019. V. 62. N. 6. P. 602–616. DOI: 10.3367/UFNe.2018.06.038371
2. V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Microvoids in solids: SR phase contrast imaging and simulations // Phys. Status Solidi B. 2018. V. 255. N. 9. P. 1800209(1–7). DOI: 10.1002/pssb.201800209
3. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, J. H. Je, A. E. Kalmykov, O. P. Kazarova, E. N. Mokhov, K. N. Mikaelyan, A. V. Myasoedov, L. M. Sorokin, K. D. Shcherbachev. Distribution of dislocations near the interface in AlN crystals grown on evaporated SiC substrates // Crystals. 2017. V. 7. P. 163–175. DOI: 10.3390/cryst7060163
4. E. N. Mokhov, T. S. Argunova, J. H. Je, O. P. Kazarova, K. D. Shcherbachev. Freestanding single crystal AlN layers grown using SiC substrate evaporation method // CrystEngComm. 2017. V. 19. P. 3192–3197. DOI: 10.1039/C7CE00569E
5. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, K. D. Shcherbachev, S. S. Nagalyuk, O. P. Kazarova, E. N. Mokhov, J. H. Je. Thermal and lattice misfit stress relaxation in growing AlN crystal with simultaneous evaporation of SiC Substrate // Mater. Sci. Forum. 2017. V. 897. P. 711–714.
DOI:10.4028/www.scientific.net/MSF.897.711
6. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, K. D. Shcherbachev, J. H. Je, J.-H. Lim, O. P.

- Kazarova, E. N. Mokhov. Microstructure and strength of AlN-SiC interface studied by synchrotron X-rays // *J. Mater. Sci.* 2017. V. 52. N. 8. P. 4244–4252. DOI:10.1007/s10853-016-0679-9
7. Т. С. Аргунова, В. Г. Кон, Дж.-Х. Лим, Дж. Х. Дже. Исследование макродефекта в монокристалле карбида кремния методом рентгеновского фазового контраста // *Кристаллография.* 2016. Т. 61. N. 6. С. 879–882;
T. S. Argunova, V. G. Kohn, J. H. Lim, J. H. Je. Study of a macrodefect in a silicon carbide single crystal by means of x-ray phase contrast // *Crystallogr. Rep.* 2016. V. 61. N. 6. P. 914–917. DOI: 10.1134/S1063774516040027
8. Т. С. Аргунова, М. Ю. Гуткин, Е. Н. Мохов, О. П. Казарова, J.-H. Lim, М. П. Щеглов. Предотвращение растрескивания кристаллов AlN на подложках SiC путем испарения подложек // *ФТТ.* 2015. Т. 57. N. 12. С. 2400–2404;
T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, E. N. Mokhov, O. P. Kazarova, J.-H. Lim, M. P. Scheglov. Prevention of AlN crystal from cracking on SiC substrates by evaporation of the substrates // *Phys. Solid State.* 2015. V. 57. N. 12. P. 2473–2478. DOI: 10.1134/S1063783415120057
9. Т. С. Аргунова, М. Ю. Гуткин, В. Г. Кон, Е. Н. Мохов. Механизмы формирования морфологических особенностей микротрубок в объемных кристаллах карбида кремния. // *ФТТ.* 2015. Т. 57. N. 4. С. 733–740;
T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, V. G. Kohn, E. N. Mokhov. Mechanisms of the formation of morphological features of micropipes in bulk crystals of silicon carbide. // *Phys. Solid State.* 2015. V. 57. N. 4. P. 752–759. DOI: 10.1134/S1063783415040058
10. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, O. P. Kazarova, E. N. Mokhov, S. S. Nagalyuk,

- J. H. Je. Synchrotron x-ray study on crack prevention in AlN crystals grown on gradually decomposing SiC substrates // Mater. Sci. Forum. 2015. V. 821–823. P. 1011–1014. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.821-823.1011
11. V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Capsule-like voids in SiC single crystal: Phase contrast imaging and computer simulations // AIP Advances. 2014. V. 4. N. 9. P. 097134(1–7).
 12. T. S. Argunova, V. G. Kohn, M. Yu. Gutkin, J. H. Lim, J. H. Je. Pink beam far-field imaging of micropipes and voids in SiC: a quantitative approach // In: Microscopy: advances in scientific research and education. P. 955–964. Badajoz, Spain: Formatex Research Center, 2014.
 13. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, J. H. Je, J. H. Lim, E. N. Mokhov, A. D. Roenkov. Structural transformation of lattice defects in free-spreading growth of bulk SiC crystals // CrystEngComm. 2014. V. 16. P. 8917–8923.
 14. V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Quantitative hard X-ray phase contrast imaging of micropipes in SiC // AIP Advances. 2013. V. 3. P. 122109(1–11).
 15. A. G. Sheinerman, M. Yu. Gutkin, T. S. Argunova, E. N. Mokhov, S. N. Nagalyuk, J. H. Je. Contact-free micropipe reactions in silicon carbide // Mater. Sci. Forum. 2013. V. 740–742. P. 597–600.
DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.740-742.597
 16. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, J. H. Je, V. G. Kohn, E. N. Mokhov. Characterization of defects evolution in bulk SiC by synchrotron x-ray imaging // In: Physics and Technology of Silicon Carbide Devices. P. 27–45. Croatia: Intech, 2013. 402 P. DOI: 10.5772/52058
 17. В. Г. Ко́н, Т. С. Аргуно́ва, Ж. Н. Же. О причине смены контраста на изображениях микротрубок в SiC с помощью синхротронного

- излучения // Поверхность. 2012. N. 10. P. 60–65.
- V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. On the cause of a contrast change in the SR images of micropipes in SiC // J. Surf. Investig. 2012. V. 6. N. 5. P. 840–844. DOI: 10.1134/S1027451012100072
18. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, V. G. Kohn, T. S. Argunova, M. A. Smirnov, J. H. Je. Contact-free reactions between micropipes in bulk SiC growth // Phys. Status Solidi A. 2012. V. 209. N. 8. P. 1432–1437. DOI: 10.1002/pssa.201127682
19. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, J. H. Je, E. N. Mokhov, S. S. Nagalyuk, Y. Hwu. SR phase contrast imaging to address the evolution of defects during SiC growth // Phys. Status Solidi A. 2011. V. 208. N. 4. P. 819–824. DOI: 10.1002/pssa.201026341
20. M. Yu. Gutkin, T. S. Argunova, V. G. Kohn, A. G. Sheinerman, J. H. Je. Micropipe Reactions in Bulk SiC Growth // In: Silicon Carbide. Materials, processing and applications in electronic devices. P. 187–206. Croatia: Intech, 2011. 546 P. DOI: 10.5772/23575
21. В. Г. Коn, Т. С. Аргунова, J. H. Je. Особенности фазово-контрастных изображений микротрубок в SiC в белом пучке синхротронного излучения // Поверхность. 2011. N. 1. С. 5–10.
- V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Features in phase contrast images of micropipes in SiC in white synchrotron radiation beam // J. Surf. Investig. 2011. V. 5. N. 1. P. 1–6. DOI: 10.1134/S1027451011010125
22. V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Far-field X-ray phase contrast imaging has no detailed information on the object // J. Phys. D: Appl. Phys. 2010. V. 43. N. 44. P. 442002(1–3). DOI: 10.1088/0022-3727/43/44/442002
23. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, M. A. Smirnov, T. S. Argunova, J. H. Je,

- S. S. Nagalyuk, E. N. Mokhov. Micropipe absorption mechanism of pore growth at foreign polytype boundaries in SiC crystals // J. Appl. Phys. 2009. V. 106. N. 12. P. 123515(1–7). DOI: 10.1063/1.3266677
24. T. Argunova, V. Kohn, J-W. Jung, J-H. Je. Elliptical micropipes in SiC revealed by computer simulating phase contrast images // Phys. Status Solidi A. 2009. V. 206. N. 8. P. 1833–1837. DOI: 10.1002/pssa.200881609
25. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova. Micropipes in silicon carbide crystals // Phys. Status Solidi C. 2009. V. 6. N. 8. P. 1942–1947. DOI: 10.1002/pssc.200881454
26. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, M. A. Smirnov, V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je, and J. W. Jung. Correlated reduction in micropipe cross sections in SiC growth // Appl. Phys. Lett. 2008. V. 93. N. 15. P. 151905(1–3). DOI: 10.1063/1.2998572
27. Т. С. Аргунова, В. Г. Кон, J. H. Je. Компьютерное моделирование фазово-контрастных изображений в белом синхротронном излучении на примере микротрубок в карбиде кремния // Поверхность. 2008. N. 12. С. 48–53.
T. S. Argunova, V. G. Kohn, J. H. Je. Computer simulation of phase-contrast images in white synchrotron radiation using micropipes in silicon carbide // J. Synch. Investig. 2008. V. 2. N. 6. P. 861–865. DOI: 10.1134/S1027451008060062
28. V. G. Kohn, T. S. Argunova, J. H. Je. Study of micropipe structure in SiC by x-ray phase contrast imaging // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 91. N. 17. P. 171901(1–3). DOI: 10.1063/1.2801355
29. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, J. M. Yi, J. H. Je, S. S. Nagalyuk, E. N. Mokhov, G. Margaritondo, Y. Hwu. Role of micropipes in the formation of pores at foreign polytype boundaries in SiC crystals // Phys.

- Rev. B. 2007. V. 76. P. 064117(1–9). DOI: 10.1103/PhysRevB.76.064117
30. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, J. M. Yi, M. U. Kim, J. H. Je, S. S. Nagalyuk, E. N. Mokhov, G. Margaritondo, Y. Hwu. Interaction of micropipes with foreign polytype inclusions in SiC // J. Appl. Phys. 2006. V. 100. N. 9. P. 093518(1–10). DOI: 10.1063/1.2359686
31. Т. С. Аргунова, М. Ю. Гуткин, А. Г. Шейнерман, Е. Н. Мохов, J. H. Je, Y. Hwu. Исследование взаимодействия дислокационных микротрубок в монокристаллах SiC методом синхротронной фазовой радиографии // Поверхность. 2005. N. 8. P. 59–66.
32. J. M. Yi, S. K. Seol, J. H. Je, T. S. Argunova, Y. Hwu, W-L. Tsai. White beam Laue topography using a scintillator-CCD combination // Nucl. Instrum. Meth. A. 2005. V. 551. N. 1. P. 152–156. DOI: 10.1016/j.nima.2005.07.049
33. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, E. N. Mokhov. Micropipes in crystals: experimental characterization, theoretical modeling and computer simulation // Proc. SPIE. 2005. V. 5831. P. 125–138. DOI: 10.1117/12.619538
34. T. S. Argunova, L. M. Sorokin, L. S. Kostina, J. H. Je, M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman. The use of the diffraction and phase x-ray contrast in study of materials // Crystallogr. Rep. 2004. V. 49. N. 1. P. S33–S39.
35. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, E. N. Mokhov, J. H. Je, Y. Hwu, W-L. Tsai. Structural Transformation of Dislocated Micropipes in Silicon Carbide // Mater. Sci. Forum. 2004. V. 457–460. P. 367–370. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.457-460.367
36. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, E. N. Mokhov, J. H. Je, Y. Hwu, W-L. Tsai, G. Margaritondo. Synchrotron radiographic study and computer simulation of reactions between micropipes in silicon carbide // J.

- Appl. Phys. 2003. V. 94. N. 11. P. 7076–7082. DOI: 10.1063/1.1624481
37. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, E. N. Mokhov, J. H. Je, Y. Hwu, W-L. Tsai, G. Margaritondo. Micropipe evolution in silicon carbide // Appl. Phys. Lett. 2003. V. 83. N. 11. P. 2157–2159. DOI: 10.1063/1.1609038
38. T. S. Argunova, M. Yu. Gutkin, J. H. Je, H. S. Kang, Y. Hwu, W-L. Tsai, G. Margaritondo. Synchrotron radiography and X-ray topography studies of hexagonal habitus SiC bulk crystals // J. Mater. Res. 2002. V. 17. N. 10. P. 2705–2711. DOI: 10.1557/JMR.2002.0391
39. M. Yu. Gutkin, A. G. Sheinerman, T. S. Argunova, J. H. Je, H. S. Kang, Y. Hwu, W-L. Tsai. Ramification of micropipes in SiC crystals // J. Appl. Phys. 2002. V. 92. N. 2. P. 889–894. DOI: 10.1063/1.1488247
40. S. Milita, R. Madar, J. Baruchel, M. Anikin, T. Argunova. Coherent X-ray imaging investigation of macrodefects and micropipes on SiC // Mater. Sci. Eng. B. 1999. V. 61–62. P. 63–57. DOI: 10.1016/S0921-5107(98)00446-2