

ОТЗЫВ

официального оппонента на диссертацию Т. С. Аргуновой «Микроструктура монокристаллов карбида кремния по данным рентгеновского фазово-контрастного изображения и топографии в синхротронном излучении»,
представленную на соискание ученой степени доктора физико-математических наук по специальности

01.04.07 – «Физика конденсированного состояния»

Диссертационная работа Т.С. Аргуновой посвящена исследованию микропор и дефектов кристаллической структуры в монокристаллах карбида кремния (SiC). В качестве подхода автор диссертации использует сочетание количественного анализа фазово-контрастных изображений, полученных в жестком синхротронном излучении (СИ), с интерпретацией рентгеновских топограмм. Кроме того, в работе удачно сочетаются как разработка уникального и весьма полезного метода компьютерного моделирования изображений микропор, так и исследование процессов образования и эволюции дефектов структуры. Совмещая разработку нового метода и его применение, соискатель добивается весьма значительных успехов.

Актуальность темы диссертации.

В последнее время появился большой интерес к проведению экспериментов с использованием СИ в связи с возможностью в самом ближайшем будущем научной работы на синхротронах, проектируемых для строительства на территории Российской Федерации. Фазово-контрастная визуализация требует высоко-когерентного излучения большой яркости, которое обеспечит синхротрон на 6 ГэВ, создание которого запланировано поблизости от Москвы. Рентгеновское изображение в жестком СИ – одно из приоритетных методических направлений в мире. Тем не менее, вплоть до начала работы Т.С. Аргуновой изучение микронеоднородностей в кристаллах не было предметом систематического исследования. Метод фазово-контрастного изображения практически важен, прежде всего, для биологии при неразрушающем исследовании мягких тканей живых организмов. В то же время метод позволяет фиксировать внутреннее строение практически любого прозрачного объекта через полный сдвиг фазы вдоль пути лучей в образце. Обратившись к изучению реальной структуры монокристаллов SiC, которые находят практическое применение в электронной промышленности и специальной технике, соискатель демонстрирует эффективность метода и развивает его дальше в количественном направлении. В связи с этим, а также по причине получения новых экспериментальных результатов, можно заключить, что тема представленного Т.С. Аргуновой диссертационного исследования является актуальной.

Содержание диссертационной работы.

Общий объем диссертации составляет 220 страниц, включая 83 рисунка и 7 таблиц. В него входят введение, 5 глав основного текста, заключение, список публикаций автора по теме диссертации и список цитируемой литературы, последний включает 295 наименований.

Во введении кратко освещено современное состояние проблемы получения монокристаллов SiC с низкой плотностью микропор, сформулирована цель исследования и обоснована его актуальность, охарактеризована научная новизна, приведены выносимые на защиту положения и представлена информация об апробации работы и публикациях автора диссертации.

Первая глава представляет собой обзор литературы. В разделе о свойствах микропор в кристаллах SiC автор отдает дань обширным исследованиям, проведенным в лабораториях разных стран. Сопоставляя результаты опубликованных работ, автор выявляет отдельные противоречия в объяснении природы и свойств дислокационных микротрубок (МТ) в SiC. На примерах показано, что ни один из традиционных методов изучения МТ в кристаллах SiC: оптическая микроскопия, рентгеновская топография и сканирующая электронная микроскопия – не дает возможности наблюдать на микроуровне за морфологией этих дефектов и определять размеры их сечений, не разрушая образца.

Затем в обзоре представлен метод фазово-контрастного изображения прозрачных объектов на просвет в излучении от синхротронных источников на накопительных кольцах. Описаны принципы метода и те проблемы, с которыми сталкиваются экспериментаторы на источниках умеренной яркости. В обзоре отмечено, что рентгеновская топография в СИ, ставшая доступной еще в 1970-х гг., получила дальнейшее развитие, благодаря появлению новых технологий производства высокоразрешающих детекторов излучения. Автором проведен интересный сравнительный анализ возможностей рентгеновских детекторов с целью демонстрации современных тенденций в получении изображений обоих типов: фазово-контрастных и брэгг-дифракционных. Примеры применения методов и описание схемы эксперимента, использованной в работе соискателя, убеждают читателя в том, что СИ с широким спектром позволяет совмещать разные методы визуализации в процессе одного эксперимента. В выводах по первой главе перечислены дискуссионные вопросы, ответы на которые даны в ходе дальнейшего изложения.

Во второй главе Т.С. Аргуновой представлен метод компьютерного моделирования фазово-контрастных изображений микрообъектов в пучке синхротронного излучения с широким частотным спектром, разработанный в диссертации. В этой части автором рассмотрена микротрубка в кристалле с размерами диаметров от долей микрометра до нескольких микрометров. Исходя из интерференционного характера изображения такой трубки, ее диаметр можно восстановить только путем подгонки изображений, измеренных на разных расстояниях от образца. Описана компьютерная программа и принципы ее работы. Интересно, что подгонка проводится по двум диаметрам, т.е. пользователь программы может сделать заключение о форме трубки. Основные результаты, полученные в этой части работы, отражены в первых двух положениях, выносимых на защиту. Положения утверждают, что получать изображения микропор в объеме кристаллов можно за счет сдвига фазы излучения, которая преобразуется в интенсивность с расстоянием от образца. Размеры сечений микротрубок можно определять путем моделирования их изображений.

Анализом корректности алгоритма программы моделирования является построение области минимума. Форма области минимума для трубок с малым сечением получила физическое объяснение, подкрепленное теоретическим расчетом (см. параграф 2.3). Автором

продемонстрировано двумерное компьютерное моделирование, которое расширяет возможности предлагаемого подхода.

Третья глава посвящена экспериментальным исследованиям, которые сопровождаются компьютерным моделированием, разработанным и описанным в предыдущей главе. Особенностью этих исследований является акцент на морфологических особенностях дислокационных микротрубок. Последние не были обнаружены ранее при использовании традиционных методов. Диссертантом предложены механизмы, объясняющие изменение формы и размеры сечений дислокационных микротрубок. В частности, реакции между дислокациями, расположенными вдоль осей трубок, представлены как убедительные причины появления особенностей, которые состоят в формировании эллиптических сечений, коррелированном уменьшении диаметров, формировании конфигураций из трубок, находящихся в контакте друг с другом. Один из выводов, сделанных автором в заключении к третьей главе, гласит, что протекание реакций между микротрубками, приводит к уменьшению их средней плотности в растущих кристаллах SiC. Это отражает новый взгляд на проблему повышения структурного совершенства кристаллов и проливает свет на коллективные взаимодействия с позитивным эффектом. Подавление источников зарождения дает вклад в уменьшение плотности трубок не только непосредственно, но и через реакции между ними.

В четвертой главе описано исследование эволюции микротрубок и дефектов структуры в процессе роста кристалла SiC. Т.С. Аргуновой обнаружено, что в условиях политипной однородности, которая может прийти на смену зарождению включений инородных политипов, наступает повышение структурного совершенства. Последнее означает, что поры, появление которых вызвано политипными включениями, постепенно зарастают. Данный вывод основан на детальном наблюдении над включениями, порами и микротрубками, выполненных на микроуровне. Не имея возможности провести наблюдения в процессе роста, автору тем не менее удалось так расположить пластины, вырезанные из одного слитка, что детектор фиксировал изображения области наблюдения, которая «перемещалась» вдоль оси роста от одной пластины к другой в направлении от затравки до окончания роста. Таким образом были исследованы слитки, полученные в условиях осевого температурного градиента.

Для кристаллов, полученных новым методом в условиях осевого и бокового температурного градиента, механизм дефектообразования был установлен впервые в литературе. Показано, что в условиях свободного распространения кристалла SiC за пределы контура затравки эволюция дефектов может завершиться формированием границ субзерен. Данный метод представляет потенциальный интерес для увеличения диаметра слитка по сравнению с диаметром кристалла-затравки. Т.С. Аргуновой обнаружено формирование существенно неоднородной дефектной структуры, в которой предельно низкая плотность дефектов соседствует с высокой в условиях политипной неоднородности.

Пятая глава интересна тем, что в ней описаны свойства гетероструктуры на подложке SiC. Обосновав практическую важность получения подложек для тонких пленок нитридов металлов III группы, автор переходит к изучению темплетов AlN/SiC, выращенных методом сублимации. Модификация последнего – это «сэндвич»-метод, которым получены все

образцы, исследованные в данной работе. Т.С. Аргунову интересует ответ на дискуссионный вопрос о типе дислокационной структуры в AlN/SiC, которая, в свою очередь, влияет на уменьшение плотности дислокаций в пленках III-нитридов по мере их роста на изучаемых темплейтах. Поиск ответа осуществляется рентгенодифракционными методами топографии и дифрактометрии при участии фазово-контрастного изображения. Интересно, что с целью предотвращения растрескивания AlN подложки SiC были сублимированы в процессе роста слоев AlN. Автором продемонстрировано в эксперименте, что структурное качество слоев без опоры на подложки толщиной ≤ 1.5 мм не хуже, чем объемных кристаллов AlN. Соискатель делает вывод о том, что в слоях AlN на подложках SiC формируется мозаичная дислокационная структура и определяет ее характеристики. Основным новым результатом, полученным в этой части работы, означает, что темплейтам AlN/SiC не свойственно преобладающее количество вертикальных прорастающих дислокаций преимущественно краевого типа, как в пленках GaN, а плотность проникающих дислокаций на несколько порядков ниже.

В заключении приводится резюме диссертационной работы, которое обобщает выводы по каждой главе и выделяет новизну вклада диссертанта на фоне задела, сформированного предшественниками. Основные новые результаты перечислены после заключения. Они позволяют сделать вывод, что цель работы достигнута.

Основные научные результаты, полученные автором, и их новизна

Все представленные в диссертационной работе решения экспериментальных задач являются новыми. Полученные результаты вносят существенный вклад в разработку количественного подхода к фазово-контрастной визуализации микропор в объеме кристаллов с использованием СИ.

Представляется, что самый выдающийся результат Татьяны Сергеевны – это разработка метода компьютерного моделирования фазово-контрастных изображений микропор, полученных в синхротронном излучении (см. результат 1 в диссертации). Этот метод позволяет извлекать количественную информацию о морфологии микропор, т.е. об их форме и размерах, что очень важно как для правильной интерпретации экспериментальных изображений, так и для разработки теоретических моделей, описывающих их образование и эволюцию на фронте роста кристалла. До появления этого метода фазово-контрастные изображения микропор в ближнем поле воспринимались многими экспериментаторами как обычные изображения, полученные в оптическом микроскопе, размеры на них измерялись буквально по линейке. Работа Т.С. Аргуновой показала, что это было совершенно неверно, что размеры и сам вид изображений определяются схемой эксперимента, и сами изображения требуют решения обратной задачи путем моделирования. Оказалось, например, что сечения микротрубок бывают не обязательно круглыми, как считалось ранее, а часто овальными или вообще сплюснутыми, а их размеры и форма могут сильно изменяться в процессе роста. Как обычно, действительность оказалась гораздо богаче и интереснее, чем о ней думали.

Другими весьма важными новыми результатами, полученными благодаря созданию метода моделирования изображений микропор, на мой взгляд, являются следующие.

– Определение размеров микропор в объеме кристалла в простой экспериментальной схеме, содержащей только источник СИ, образец и детектор. При полном отсутствии фокусирующих устройств, которые просто не нужны, изображения можно получать, а субмикронные диаметры трубок определять с хорошей точностью даже без монохроматоров пучка.

– Обнаружение коллективных эффектов, протекающих в ансамблях дислокационных микротрубок в процессе роста кристалла SiC, которые приводят к новым свойствам, а именно: формированию пор на границах включений инородных политипов, реакциям между микротрубками, изменению их сечений и, в итоге, к уменьшению их плотности.

Степень обоснованности научных положений, результатов и выводов

Достоверность и обоснованность результатов подтверждена сопоставлением с теоретическими моделями и количественными оценками. Надежность экспериментальных данных обусловлена применением современных приборов и оборудования, испытанных многими другими экспериментаторами на станциях СИ в аналогичных условиях. Правильный выбор методов исследования и их оптимальное сочетание не вызывают сомнений.

Отдельно стоит отметить, что ключевые исследования проводились Т.С. Аргуновой на установках класса «мегасайенс» и публиковались в самых авторитетных мировых и отечественных журналах.

Практическая значимость полученных автором результатов

Практическая значимость разработанного автором метода исследования не ограничивается конкретными экспериментальными условиями: шириной спектра СИ, типом кристалла или экспериментальным оборудованием, и поэтому может найти применение для широкого класса материалов с первичными порами. Микро-масштаб, количественная информация и неразрушающий характер – таковы основные свойства реализованного подхода. Его можно рекомендовать как для развития технологий получения совершенных кристаллов, так и для некристаллических объектов (в специальных случаях). Новые эффекты, получившие объяснение в настоящей работе, способствуют пониманию процессов, протекающих в реальных кристаллах.

Рекомендации по использованию результатов и выводов диссертации

Полученные в диссертации результаты представляют интерес в связи со строительством проектируемых в настоящее время источников СИ на территории России. Из трех источников, запланированных в Федеральной научно-технической программе, два: в Сибири и на Дальнем Востоке – будут источниками умеренной яркости. При условии достаточной длины поперечной когерентности пучка разработанные соискателем подход и программное обеспечение можно прямо переносить на станции отечественных синхротронов. Для источника с энергией электронов 6 ГэВ подход может быть взят за основу.

Следует ожидать, что переход на промышленные рельсы в производстве кристаллов SiC потребует всех знаний, накопленных в результате проведения лабораторных экспериментов. Уже теперь ученые-технологи ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН (лаб. Е.Н. Мохова) используют полезные практические знания, к которым можно отнести установленные в

диссертации механизмы дефектообразования в объемных кристаллах гексагонального габитуса, механизмы снижения плотности микротрубок в условиях политипной однородности и механизмы релаксации напряжений несоответствия в AlN/SiC.

Оформление диссертации, публикации и апробация

Диссертационная работа имеет стройную структуру, вытекающую из единого замысла. Она логично построена, и материал четко изложен. Важно отметить, что работа написана весьма понятным и грамотным языком. Иллюстрации выполнены на высоком уровне с использованием профессиональных программ. Оформление отражает замысел и отличается большой аккуратностью. Материалы диссертации опубликованы в 40 научных работах, как статьях, так и книгах, размещенных в изданиях первого и второго квартиля, а также в материалах престижных международных конференций. Основные результаты, представленные в диссертации, многократно докладывались автором на научных конференциях. Содержание диссертации адекватно отражено в автореферате.

Замечания по диссертации

1. В работе большое внимание уделено эволюции дефектной структуры в процессе роста кристаллов SiC (раздел 4.4) и описанию взаимодействия между дефектами и дислокационными микротрубками (главы 3 и 4). При этом подразумевается, что описанные реакции между дислокациями всегда приводят к уменьшению плотности дислокаций в кристалле (аннигиляция парных дислокаций). Однако даже тот факт, что, как справедливо описано в работе, по мере роста стабилизируется основной политип, не означает, что имеющиеся проникающие дислокации обязательно будут активно взаимодействовать с аннигиляцией. Их плотность может оставаться прежней (или уменьшаться незначительно). Теоретически возможен даже обратный процесс расщепления дислокаций, увеличения их плотности. В работе в разделе 4,4 даже описан процесс зарождения новых МТ в процессе роста. Очевидно, что направление и скорость процесса реакций дислокаций, в первую очередь, определяются технологическими параметрами процесса роста. В частности, характеристики лучших коммерческих образцов подложек SiC, где зачастую совсем отсутствуют МТ на всей поверхности подложек, подтверждает это. Представляется, что в работе не хватает анализа возможных зависимостей процесса уменьшения плотности проникающих дислокаций от технологических параметров. Также весьма полезными были бы рекомендации для технологов, какие параметры процесса могут улучшить кристаллическое совершенство кристаллов.

2. Для микропор трубчатой формы Т.С. Аргунова употребляет выражение «дислокационные микротрубки (МТ)». В то же время природа микротрубок, описываемых по ходу изложения, оказывается разной. В частности, в разделе 3.1 описано формирование МТ путем диффузии вакансий по дислокациям, образующим ансамбль дислокаций, вытянутых вдоль оси роста и достигающих фронта роста кристалла. Выражение «дислокационная микротрубка» для такого ансамбля с дислокационным зарядом вполне понятно. Однако, что касается трубок, предсказанных Франком, их природу более правильно отражает термин «винтовые супердислокации с полыми ядрами».

3. В четвертой главе диссертации описано зарастание пор, которые формируются на начальной стадии роста. В обширной литературе по росту кристаллов SiC образование пор часто связывают с пузырьками газа, которые появляются по причине недостаточной герметизации обратной стороны затравки. При обсуждении экспериментальных результатов это явление не упоминается, а зарождение пор объясняется их формированием из микротрубок по границам включений паразитных политипов. Не следует, конечно, забывать о том, что политипная неустойчивость и микротрубки – это весьма нежелательные дефекты структуры. Однако сводить формирование пор только к включениям паразитных политипов означает преувеличивать одну сторону процесса дефектообразования в ущерб другой. При этом следует признать, что потенциал метода фазово-контрастного изображения для создания подробных карт пор в SiC и их эволюции показан столь убедительно, что дискуссионный вопрос о природе пор отступает на второй план.

4. В разделе 3.2.2 описывается модель бесконтактной реакции МТ («испускания» дислокации одной МТ с последующей реакцией с дислокацией в другой МТ). В целом описание этого процесса выглядит очень убедительным и интересным. Было бы интересно также увидеть и экспериментальные изображения, подтверждающие как тип дислокаций, связанных с трубками, так и величину их векторов Бюргерса до и после реакции. Однако в данном разделе экспериментальных результатов (как, например, в разделе 3.2.3, описывающем контактные взаимодействия) не представлено.

5. На нескольких важных для понимания сути работы иллюстрациях, в частности, экспериментальных фазово-контрастных изображениях (например, рисунки 25 (соответствует Рис.6 автореферата), 30, 38 и др.) не обозначено направление роста кристаллов, что затрудняет восприятия материала.

Однако отмеченные незначительные недостатки не влияют на основные результаты работы, которые полностью отвечают сформулированной во введении к диссертации цели исследований.

Заключение

Резюмируя сказанное, можно утверждать, что диссертация Т. С Аргуновой выполнена на высоком научном уровне и является завершенной научно-квалификационной работой, сделанной автором самостоятельно. Полученные в работе результаты и выводы являются достоверными и обоснованными. Автореферат диссертации и публикации автора в высокорейтинговых научных изданиях полностью отражают научную новизну и содержание работы. Работа является прекрасным примером очень качественной научной работы, в которой сочетаются блестящие теоретические результаты, создание исключительно полезного метода моделирования и экспериментальные результаты высочайшего качества, полученные на установках класса «мегасайенс» и опубликованные в самых авторитетных мировых и отечественных журналах по данной тематике. Приведенные в работе результаты позволяют квалифицировать их как существенные для современной физики конденсированного состояния. Работа имеет большое практическое значение для развития методов визуализации с использованием СИ, что существенно для развития синхротронных исследований на территории России.

