

## 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 экспериментальному исследованию микропор и дефектов структуры в объеме кристаллов рентгеновскими методами с использованием синхротронного излучения (СИ). В качестве объекта исследования был взят карбид кремния, полученный методом сублимации в сэндвич-ячейке. Этот способ роста монокристаллического карбида кремния (SiC), представленный в ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН (лаб. Е. Н. Мохова), был описан в ряде патентов, первый из которых датируется 1970 г. Впоследствии метод совершенствовался и был приспособлен для получения кристаллов AlN/SiC, также исследованных соискателем.

Эксперименты на источнике СИ проводились Т. С. Аргуновой с использованием относительно нового метода фазово-контрастного изображения на основе свободного распространения когерентного пучка СИ с энергией фотонов  $> 10$  кэВ. Обнаруженные в кристаллах микропоры имели столь малые размеры, что изменение поглощения рентгеновского излучения было пренебрежимо мало. Тем не менее, изображения микропор формировались за счет заметного сдвига фазы излучения, прошедшего сквозь образец. Следует подчеркнуть, что в данном методе фокусирующая рентгеновская оптика не применяется. Суть метода соответствует идее голографии Габора.

Использование фазово-контрастного изображения в сочетании с методом рентгеновской дифракционной топографии позволило получить большой объем экспериментальных данных и установить новые свойства микропор, в том числе супердислокаций с полым ядром. Анализ данных дал ответы на целый ряд дискуссионных вопросов. Были сделаны новые заключения о формировании и эволюции дефектной структуры в растущих кристаллах SiC.

**Актуальность** выполненной работы не вызывает сомнений. Проектирование и строительство установок класса «Мегасайенс» уже заявлено в Российской Федеральной научно-технической программе развития синхротронных и нейтронных исследований. Подготовка к использованию источников СИ, развернутая в наши дни, призвана решить ряд проблем, включающих разработку методов исследования материалов, имеющих важные практические свойства. С другой стороны, совершенство кристаллов SiC, достигнутое как их производителями, так и учеными-технологами, позволяет выполнять рентгеновские исследования на микроуровне. Эти исследования дают ключ к пониманию механизмов, приводящих к дальнейшему снижению плотности дефектов кристаллической решетки.

До начала настоящей работы опыт изучения возможностей фазово-контрастной визуализации микронеоднородностей в объеме кристаллов практически отсутствовал, а несистематические экспериментальные наблюдения носили качественный характер.

Недостаток количественной информации о микропорах в SiC восполнен в диссертации Аргуновой Т. С.

**Научная новизна** представленных автором результатов вполне очевидна. В диссертации впервые разработан метод компьютерного моделирования фазовых изображений в пучке СИ с относительно большой шириной спектра (наряду с монохроматическим излучением). Разработка метода выдвигает проделанную работу на передний край исследования изображений в жестком СИ, которое ведется на всех крупных источниках СИ. Выявлены неизвестные ранее морфологические особенности дислокационных микротрубок в SiC, в частности изменение формы и размеров их сечений, которые получили объяснение в построении теоретических моделей. Обнаружен эффект образования пор на границах включений инородных политипов SiC в результате притяжения микротрубок к границам включений. Изучение процессов эволюции включений, пор и микротрубок при стабильном росте основного политипа SiC позволило установить новый фактор снижения плотности дефектов структуры. Впервые зафиксированы коллективные эффекты, в частности реакции между супердислокациями (трубками), приводящие к уменьшению размеров сечений и зарастанию трубок. Установлен механизм дефектообразования при выращивании кристаллов SiC новым методом свободного распространения. Впервые экспериментально доказано, что релаксация напряжений несоответствия периодов решеток AlN и SiC протекает путем формирования мозаичной дислокационной структуры и установлены ее характеристики.

**Научная и практическая значимость** представленной работы состоит в количественном подходе, который позволяет экспериментатору определять размеры микро неоднородностей корректным путем при помощи оригинальной программы моделирования. Последняя учитывает такие реальные факторы как спектр излучения, размер источника и распределение интенсивности свечения, проекцию интенсивности источника на детекторе и разрешение детектора. Благодаря пониманию автором механизмов формирования фазово-контрастных изображений, у читателей опубликованных результатов складывается ясное представление о популярном методе визуализации, который используется на всех источниках СИ третьего поколения. Расчет и анализ контраста дают заметный вклад в актуальное направление рентгеновской визуализации.

С другой стороны, потребности технологии и практики получения кристаллов SiC получили удовлетворение в накоплении экспериментального материала по дефектообразованию. Вклад в достижения технологов был сделан при изучении проблемы выращивания высоко-легированных политипно-однородных кристаллов SiC. Исследованы особенности не только традиционных технологий, но и нового метода выращивания кристаллов в условиях осевого градиента температуры и радиального теплового поля. Следует ожидать, что накопление экспериментального материала по дефектообразованию еще покажет свою эффективность при восстановлении отечественного производства подложек SiC большого диаметра для электронных приборов нового поколения.

**Материалы диссертации организованы** в виде введения, пяти глав, списка основных результатов, выводов, заключения и списка литературы. Каждая глава имеет аннотацию и выводы; обобщение последних сделано в заключении.

В первой главе представлен обзор литературных данных, оформленный в виде четырех разделов. В первом разделе описаны природа и свойства микропор в кристаллах SiC. Приведены обширные данные других исследователей о моделях формирования дислокационных микротрубок, о влиянии микроструктуры на свойства SiC. На примерах показаны ограничения традиционных методов, используемых для изучения микропор в SiC. В конце первой главы автором сделан акцент на тех вопросах, которые остались без ответа после изучения микротрубок традиционными методами. Во втором разделе первой главы представлен метод фазово-контрастного изображения прозрачных объектов на просвет в синхротронном излучении. Описаны принципы метода и те проблемы, с которыми столкнулись экспериментаторы в результате распространения по миру и адаптации метода к источникам СИ умеренной яркости. Третий раздел посвящен методу рентгеновской топографии с использованием СИ. Подробно описаны ее отличия от лабораторного прототипа, который старше более чем на полвека. В четвертом разделе даны примеры совместного применения методов регистрации фазово-контрастных и рентгенотопографических изображений. Регистрация обоих типов изображений в процессе одного эксперимента доступна на тех станциях, где пучок не монохроматизирован. Показана и описана схема эксперимента, использованная в данной работе.

Во второй главе представлен метод компьютерного моделирования фазово-контрастных изображений, разработанный в диссертации. Метод позволяет моделировать изображения микропор в пучке СИ как с широким частотным спектром, так и при заданной длине волны. 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. Внимание читателя акцентируется на том, что изображение трубки полностью определяется сдвигом фазы вдоль пути лучей в образце. В таких условиях реальный размер сечения можно определить только путем решения обратной задачи вычисления профиля изменения фазы из измеряемого профиля интенсивности. Математическое описание принципов метода и оригинальные примеры его применения убеждают в надежности и достоверности разработанного подхода. Для полноты картины обсуждаются ограничения метода моделирования фазовых изображений в особых случаях.

В третьей главе начинается описание экспериментальных исследований микротрубок в кристаллах SiC, которые сопровождаются компьютерным моделированием фазово-контрастных изображений. Описаны и объяснены новые эффекты изменения формы и размеров сечений микротрубок. Предложен механизм формирования морфологических особенностей. Приведены экспериментальные данные, прямо или косвенно свидетельствующие в пользу коллективных эффектов в ансамбле микротрубок. В частности, представлены типы дислокационных реакций, которые происходят когда трубки вступают в контакт. Эффект коррелированного уменьшения диаметров микротрубок, удаленных друг от друга, объяснен при помощи модели бесконтактной реакции. Результаты, подкрепленные количественными оценками, заставляют согласиться с автором в том, реакции способствуют уменьшению средней плотности микротрубок в монокристаллах SiC.

Четвертая глава диссертации посвящена изучению процессов формирования и эволюции дефектной структуры в условиях стабилизации основного поли типа растущего кристалла SiC. Рассматривается зарождение пор, вызванное появлением включений.

инородных политипов, которое, как правило, имеет место на начальной стадии роста. Приводятся данные о важной роли дислокационных микротрубок в образовании и росте пор. Затем описываются наблюдения над включениями, порами и микротрубками при устойчивом росте основного политипа. Дан ответ на актуальный вопрос о превращениях дефектов. В целом продемонстрировано повышение структурного совершенства в условиях политипной однородности. Эта глава отличается стройностью изложения; она обильно иллюстрирована изображениями, полученными разными методами, которые использовались наряду с рентгеновскими методами: оптической и фотолюминесцентной (ФЛ) микроскопией, сканирующей электронной микроскопией. Включения политипов хорошо видны на ФЛ микрофотографиях, которые позволяют идентифицировать их тип.

Следует отметить, что длинная глава 4 состоит из двух частей, каждая из которых показывает нам процессы дефектообразования в неодинаковых условиях. В одном случае метод сублимации используют в условиях осевого температурного градиента между источником и затравочным кристаллом. В другом случае, кроме того, существует боковой градиент температуры между центром тигля и стенками тигля. Кристалл SiC, растущий в двух направлениях одновременно: перпендикулярно поверхности затравки и в поперечном направлении за пределы контура затравки, приобретает габитус секториально построенного гексагонального кристалла. Несмотря на уникальность таких кристаллов, количество исследованных слитков позволило набрать необходимую статистику и сделать достоверные выводы. В пользу установленного в работе механизма дефектообразования свидетельствуют также количественные оценки, сделанные по ходу описания моделей формирования сложных ансамблей дефектов.

В пятой главе обсуждаются результаты исследований дислокационной структуры вблизи интерфейса AlN-SiC. Для наглядности автором выбран путь сопоставления с хорошо изученной проблемой дефектообразования в пленках GaN на инородных подложках. Строго говоря, подложки SiC не могут обеспечить получение качественных эпитаксиальных слоев III-нитридов из-за большого несоответствия параметров решетки, различия коэффициентов термического расширения и химической несовместимости. Поэтому структурные свойства тонких пленок AlN на подложках SiC скорее похожи на свойства пленок GaN/SiC, чем отличаются от них. Тем не менее, следует признать, что улучшение совершенства с толщиной слоя изменяет ситуацию в пользу кристаллов AlN. Тот факт, что вопрос о типе дислокационной структуры в AlN/SiC остается дискуссионным, был одним из побудительных мотивов обращения автора к этим исследованиям. В работе изучены образцы, полученные по оригинальной технологии, которая дает возможность полностью предотвратить растрескивание AlN путем сублимации подложки SiC. Тщательное выполнение экспериментов с использованием методов рентгеновской топографии и дифрактометрии позволило представить результаты в ясном и наглядном виде. На основе полученных данных была разработана модель релаксации напряжений несоответствия в слоях AlN. Процессы генерации и скольжения дислокаций с поверхности растущего слоя научно обоснованы и могут сочетаться с другими механизмами релаксации.

Подводя итоги своей работы, соискатель формулирует основные результаты и выводы, которые представляются вполне достоверными и обоснованными.

Заключение по работе в целом написано диссертантом с целью показать контуры и место проведенного исследования среди других работ. Из заключения очевидно, что положительный ответ автора на необходимость разработки метода моделирования, в итоге предоставил тот недостающий инструмент исследования, который и определил достижение поставленной цели.

В то же время, в работе имеются следующие недостатки.

1. В разделе «научная новизна» автор пишет, что в диссертации разработан метод компьютерного моделирования фазово-контрастных изображений для определения размеров микропор и т.п. в монокристалле. Согласно этому положению, диссертант разработала общий метод, который может быть использован не только при анализе дефектов в кристаллах SiC и AlN. Если это так, то почему были исследованы только эти два материала? Работает ли данный метод, столь же эффективно, для кристаллов других типов, например соединений A<sub>2</sub>B<sub>6</sub>?
2. На странице 129 автор описывает механизм образования пор и предполагает, что поры растут за счёт микротрубок. Возникает вопрос. Как это происходит? Микротрубки «реально» перемещаются под действием упругих напряжений? Может быть движутся вакансии, которые затем конденсируются в поры? Или микротрубки генерирует дислокации, которые перемещаются в кристалле и сливаются в микропоры?
3. В процессе высокотемпературного отжига, который имеет место в процесс роста слоя AlN на SiC, когда слой AlN становится сплошным на межфазной границе раздела фаз формируется, так называемая, диффузионная зона. В своё время, известный физик и материаловед Я.Е. Гегузин, подробно изучал процессы, протекающие в этой зоне. Исследования он проводил на примере металлов, но процессы, протекающие как в широкозонных полупроводниках, так и металлах, как следует из данных, приведённых в диссертации во многом подобны. Поэтому хочу обратить внимание автора диссертации на книгу «Я.Е. Гегузин. *Диффузионная зона*. (Москва, «Наука», Главная редакция физико-математической литературы, 1979) 344с.», в которой эти вопросы изложены. Однако, это не замечание, а скорее пожелание.
4. На стр. 155 последний абзац сказано: «Скорость испарения SiC зависит не только от состава паровой фазы... В таких местах формируются углубления, которые быстро разрастаются и превращаются в поры. В процесс продолжительного отжига поры проникают в растущий кристалл AlN». Верно ли я понял, что поры, возникающие в SiC проникают в AlN? Если это так, то каким образом это происходит?

Указанные замечания не влияют на положительную оценку выполненной работы и не ставят под сомнение основные выводы диссертации.

Диссертация Аргуновой Т.С. является законченным экспериментальным научным исследованием, объединенным единым замыслом и построенным логично и обосновано.

Диссертация написана грамотным русским языком, четко структурирована, очень хорошо иллюстрирована и аккуратно оформлена.

Каждая глава содержит содержательные выводы, что облегчает понимание материала.

Новые научные результаты, полученные диссертантом, направлены на решение важной научно-технической задачи — изучение процессов образования и эволюции дефектов в монокристаллах карбида кремния путем количественного анализа фазово-контрастных

изображений, полученных в жестком синхротронном излучении, и рентгеновских топограмм, на мой взгляд, будут иметь большое практическое значение. Выводы и рекомендации достаточно обоснованы. В целом это очень крепкая и добротная докторская диссертация. Я, получил большое удовольствие, прочтя ее.

Автореферат диссертации правильно отражает ее основное содержание.

Считаю, что диссертационная работа Аргуновой Татьяны Сергеевны и удовлетворяет всем необходимым требованиям ВАК, а её автор заслуживает присуждения учёной степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.07 – Физика конденсированного состояния.

Официальный оппонент

Зав. лабораторией структурных

и фазовых превращений в конденсированных средах

ФГБУН Института проблем машиноведения РАН

д.ф.-м.н., профессор, лауреат премии президиума РАН им.

П. А. Ребиндера, лауреат премии Правительства

Санкт-Петербурга и Санкт-Петербургского

научного центра РАН по физике

им. А.Ф. Иоффе

сл.тел: +7(812) 321-47-84

e-mail: [sergey.a.kukushkin@gmail.com](mailto:sergey.a.kukushkin@gmail.com)

С.А. Кукушкин

Я, Кукушкин Сергей Арсеньевич, даю согласие на включение моих персональных данных в документы, связанные с работой диссертационного совета, и их дальнейшую обработку.



*Кукушкин С.А.*

**ПОМОЩНИК ДИРЕКТОРА**

*С.А. Кукушкин*

**2021 г.**