УДК 548.73

# О ПРИЧИНЕ СМЕНЫ КОНТРАСТА НА ИЗОБРАЖЕНИЯХ МИКРОТРУБОК В SiC C ПОМОЩЬЮ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

© 2012 г. В. Г. Кон<sup>1</sup>, Т. С. Аргунова<sup>2, 3</sup>, Jung Ho Je<sup>3</sup>

<sup>1</sup>НИЦ "Курчатовский Институт", Москва, Россия <sup>2</sup>Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия <sup>3</sup>Pohang University of Science and Technology, Pohang, Republic of Korea Поступила в редакцию 12.01.2012 г.

Предложено теоретическое объяснение экспериментально наблюдаемой особенности фазово-контрастных изображений микротрубок в карбиде кремния в белом пучке синхротронного излучения, которое состоит в том, что разные трубки или различные участки одной и той же трубки имеют контраст разного цвета. Чаще всего контраст белый (более высокая интенсивность) в центре и черный по краям, но иногда знак меняется, и контраст становится черным в центре и белым по краям. Обсуждаются результаты экспериментов, выполненных на источнике синхротронного излучения в г. Поханг, Республика Корея. Причиной смены контраста может быть изменение угла между осью микротрубки и направлением пучка синхротронного излучения. При не очень малых значениях угла набег фазы в сечении микротрубки мал и контраст стандартный. Если же угол становится очень малым, то размер продольного сечения трубки пучком возрастает, и это приводит к осцилляциям волнового поля в области сечения. На большом расстоянии в белом пучке эти осцилляции усредняются, и результатом усреднения является черный контраст.

#### ВВЕДЕНИЕ

Дислокационные микро- и нанотрубки представляют собой дефекты структуры в кристаллах карбида кремния (SiC) и нитрида галлия (GaN). Диаметры микротрубок в SiC на несколько порядков больше, чем в GaN, их значения находятся в интервале от долей микрона до десяти микрон. Диагностика таких дефектов является существенной частью производства, определяющей качество и, соответственно, коммерческую стоимость подложек SiC и GaN. В последнее время в кристаллических пластинах 4*H*-SiC, поставляемых лучшими мировыми производителями, плотность распределения микротрубок не превышает ~0.7-0.5 см<sup>-2</sup>. Однако такие пластины стоят очень дорого. Для массового производства недорогих совершенных кристаллов не хватает знаний о механизмах зарождения и эволюции микротрубок, об их реакциях между собой и с другими дефектами. Популярным методом диагностики микротрубок в SiC является оптическая микроскопия. Однако разрешения и чувствительности оптических микроизображений недостаточно для исследования природы этих дефектов.

Основные сведения о природе микротрубок в SiC были получены методами сканирующей электронной микроскопии, рентгеновской топографии с использованием синхротронного излучения (СИ) [1] и атомно-силовой микроскопии [2]. Моделирование рентгеновских дифракционных изображений, измеренных в белом СИ, позволило определить векторы Бюргерса дислокаций, расположенных вдоль осей микротрубок [1]. При этом дислокации предполагались чисто винтовыми, в строгом соответствии с теорией Ф. Франка [3], а сами микротрубки – цилиндрическими. Полученные результаты использовались другими авторами [4], но независимого исследования размеров и морфологии самих трубок не проводилось.

В последние годы получил развитие альтернативный неразрушающий метод исследования микротрубок, а именно, рентгеновский фазовый контраст [5-9]. Источники СИ третьего поколения имеют малый угловой размер, что обеспечивает высокую пространственную когерентность пучка. Кроме того, исходный спектр СИ, т.е. без монохроматизации, в рассматриваемом нами случае имеет форму кривой с максимумом при определенной энергии. Уменьшение интенсивности излучения с высокой энергией фотонов является следствием механизма генерации, а излучение низких энергий поглощается в кристалле. По этой причине даже "белое" СИ является частично когерентным, и этого вполне достаточно для регистрации фазово-контрастных изображений мелких объектов, таких как микротрубки в SiC, в виде светлых и темных полос в центральной части изображений.

Подход, основанный на регистрации изображений в белом СИ, иногда предпочтительнее по сравнению с использованием монохроматора, поскольку более высокая интенсивность определяет малое время экспозиции. Простая схема эксперимента и наличие большого диапазона длин волн позволяют оптимально размещать оборудование с тем, чтобы сочетать различные методы исследования в процессе одного эксперимента, комбинируя получение фазово-контрастных изображений с топографией, томографией и аналитическими методами.

Однако анализ возможностей каждого из сочетаемых методов нуждается в специальном исследовании. Как впервые было отмечено в [10]. для получения надежной количественной информашии в методе фазового контраста необходимо развитие компьютерного моделирования изображений объектов разной формы и размера на основе расчета интеграла Кирхгофа для монохроматических гармоник излучения СИ и последующего суммирования по реальному спектру с учетом поглощения в образце. В настоящее время нами разработана программа FIMTIM для автоматического определения параметров эллиптического сечения микротрубки пучком на основе совпадения теоретического и экспериментального профилей относительной интенсивности. С помощью программы было показано, что сечение трубки в процессе роста может изменять не только размер, но и ориентацию [11, 12].

Дальнейшее исследование [13, 14] привело к пониманию характерной особенности изображений, заключающейся в том, что на относительно больших расстояниях (около 50 см) структура изображения слабо зависит от размеров сечения микротрубки, особенно если они малы (меньше микрона). Размер влияет только на контраст изображения, в то время как само изображение имеет универсальный характер. Заметное изменение контраста на экспериментальных изображениях микротрубки при движении вдоль ее оси долгое время казалось загадочным, и эта загадка была решена.

В данной работе мы предлагаем объяснение другой особенности экспериментальных изображений, а именно, смену знака контраста при движении вдоль оси микротрубки, а также разные знаки контраста на изображениях разных трубок. Причиной смены знака контраста является изменение направления оси микротрубки таким образом, что она составляет малый угол с направлением пучка СИ. При этом увеличивается размер продольного сечения трубки пучком, что приводит к сильным осцилляциям волнового поля в области поперечного сечения. На большом расстоянии в белом пучке эти осцилляции усредняются, и результатом усреднения является черный контраст.

Заметим, что для исследования общей проблемы синхротронных фазово-контрастных изображений микротрубки в кристаллах карбида кремния являются интересным объектом, так как их сечения пучком имеют поперечный диаметр, сравнимый или меньше диаметра первой зоны Френеля, а продольный диаметр может варьироваться в широких пределах. Измерение экспериментальных изображений описано во втором разделе, где также показаны примеры изменения контраста. В третьем разделе представлены результаты теоретического анализа, доказывающие сделанное выше утверждение.

### ЭКСПЕРИМЕНТ

Кристалл 4*H*-SiC, исследованный в данной работе, был выращен методом сублимации [15] в атмосфере аргона при температуре 2180°С и со скоростью 0.5 мм/ч. Ось роста была параллельна направлению [0001]. Пластины, вырезанные примерно перпендикулярно оси роста, были отполированы с обеих сторон до толщины 0.49 мм. Поверхность пластин была разориентирована относительно базисной плоскости на 8°. Одну из пластин разрезали далее на полоски шириной 0.5 мм, толщиной 0.49 мм и длиной 15 мм.

Фазово-контрастные изображения были получены на станции 7В2 (Рентгеновская микроскопия) источника СИ третьего поколения Pohang Light Source в г. Поханге, Республика Корея. Поворотный магнит обеспечивал эффективный размер источника 60 мкм в вертикальном направлении и 160 мкм – в горизонтальном. Источник находился на расстоянии 34 м от образца. Для расчета эффективного спектра излучения использовалась кривая исходного спектра источника в диапазоне значений энергии от 5 до 40 кэВ, которая имеет монотонно убывающую форму. После учета поглощения в бериллиевом окне толщиной 2 мм и в пластине SiC толщиной 490 мкм спектр приобретал ярко выраженный максимум при энергии 16 кэВ [10]. Излучение, прошедшее сквозь образец, попадало на кристалл-сцинтиллятор CdWO<sub>4</sub> толщиной 200 мкм и возбуждало его свечение. Видимый свет отражался от зеркально полированной пластины кремния, служившей зеркалом, и проходил сквозь систему линз. Увеличенное изображение регистрировалось детектором, матрица которого имела размер 1600 × 1200 пикселей и чувствительность 14 бит. Размер поля зрения был 540 мкм (H), размер пиксела -0.34 мкм.

Образцы устанавливались на держатель, обеспечивающий перемещение вдоль трех осей с точностью 0.1 мкм, повороты и вращение вокруг вертикальной оси. Поверхность образцов выставлялась перпендикулярно пучку, при этом оси микротрубок располагались перпендикулярно базисной плоскости, отклоняясь от нормали к поверхности на угол 8°. Расстояние от сцинтиллятора до образца изменялось от 5 до 30 см. Измерение фазово-контрастных изображений прово-



**Рис. 1.** Фазово-контрастные изображения микротрубок в образце карбида кремния, выбранные из серии измерений в процессе вращения образца в пучке СИ. Соседние снимки в серии от (а) до (г) различаются углом поворота образца на 2°. Видно, как с изменением ориентации микротрубок относительно оси пучка происходит изменение знака контраста вдоль осей микротрубок.

дилось в двух режимах: 1) путем трансляции; 2) путем вращения образцов в виде полосок вокруг вертикальной оси, расположенной перпендикулярно пучку и параллельно длинному краю полоски. В первом режиме выявляли распределение микротрубок в объеме образцов; во втором режиме исследовали их ориентацию в пространстве. Вращение осуществлялось в интервале 180° с шагом 2°. Изображения регистрировались пошагово в режиме съемки с быстрым затвором.

На рис. 1 показаны типичные фазово-контрастные изображения из серии, измеренной путем вращения образцов в пучке СИ. Когда образец в виде полоски обращен торцом к пучку, микротрубки видны по всей своей длине (на рисунке не показанной). Было отмечено, что в некоторых местах они отклонялись от оси роста на значительно большие углы, чем угол разориентации 8°. На рисунке 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.

#### ТЕОРИЯ

Фазово-контрастные изображения микротрубок в белом пучке СИ могут быть вычислены теоретически как некогерентная суперпозиция изображений для различных гармоник, причем вес каждой гармоники (эффективный спектр излучения) необходимо рассчитывать с учетом поглощения ее интенсивности на пути от источника до детектора. Заметим, что учет поглощения в относительно толстом образце может приводить к существенному изменению эффективного спектра. Так, для источника СИ в г. Поханг спектр имеет максимум при энергии фотонов E = 16 кэВ и резко убывает при уменьшении энергии, т.е. даже при отсутствии монохроматора реальный спектр, формирующий изображение, локализован около 16 кэВ.

Такой спектр зависит от источника и от толщины всех поглотителей на пути пучка. Небольшой сдвиг максимума может быть достигнут при изменении толщины поглотителей, но варьировать энергию в широких пределах невозможно.

Расчет монохроматического изображения микротрубки можно делать в приближении квазилинейного объекта, который сильно изменяет фазу проходящей через него волны в направлении поперек оси и очень слабо — вдоль оси. Выделяя профиль относительной интенсивности I(x) в каком-либо сечении поперек оси, можно пренебречь изменением фазы вдоль оси. В этом приближении профиль интенсивности описывается с помощью однократного интеграла в бесконечных пределах:

$$I(x) = |a(x_0)|^2, \quad a(x_0) = \int dx_1 P_K(x_0 - x_1, Z) T(x_1),$$

$$x_0 = x \frac{z_0}{z_1},$$
(1)

где  $z_0$  – расстояние от источника до объекта,  $z_1$  – расстояние от объекта до детектора,  $z_t = z_0 + z_1$ ,  $Z = z_0 z_1/z_t$ . При этом задача сводится к вычислению свертки двух функций, первая из которых является пропагатором Кирхгофа:

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

где  $\lambda$  — длина волны излучения. Вторая функция T(x) называется трансмиссионной функцией. Она описывает воздействие на когерентную волну со стороны объекта. Для объектов малых размеров достаточно учесть изменение фазы и амплитуды волны в рамках геометрической оптики без изменения траектории лучей, т.е. предполагая, что все лучи параллельны оптической оси. Для пустоты в материале, имеющей эллиптическое сечение, нужно учитывать только искажение

волны за счет неоднородности. В результате имеем T(x) = 1 при |x| > R, а при |x| < R

$$T(x) = \exp\left[(iP + M)\left(1 - \frac{x^2}{R^2}\right)^{1/2}\right], \quad P = \frac{4\pi}{\lambda}\delta R_0,$$

$$M = P\frac{\beta}{\delta}.$$
(3)

Здесь 2*R* и 2*R*<sub>0</sub> – диаметры эллиптического сечения микротрубки поперек и вдоль пучка соответственно,  $\delta - i\beta = 1 - n$ , где *n* – комплексный показатель преломления среды. В эксперименте диаметры эллиптического сечения заранее неизвестны и подлежат определению.

Так как подинтегральная функция в (1) не убывает на бесконечности, то для численных расчетов интеграл необходимо переписать в следующем виде:

$$a(x_0) = 1 + \int dx_1 P_K(x_0 - x_1, Z) [T(x_1) - 1], \qquad (4)$$

используя известное свойство нормировки пропагатора. Профили интенсивности для монохроматических гармоник вычислялись на сетке точек в интервале от 5 до 40 кэВ и затем суммировались с учетом спектра, показанного в [10–12]. Численное моделирование изображений проводилось по программе FIMTIM, описанной в [11–12].

Для лучшего понимания физики формирования когерентных монохроматических изображений упростим задачу, сделав очевидные приближения. Во-первых, можно пренебречь поглощением и записать M = 0. Так как  $z_0 \ge z_1$ , то можно перейти к приближению плоской волны ( $z_0 = \infty$ ) и заменить  $x_0$  на x, а Z на  $z_1$ . Заметим также, что пропагатор Кирхгофа слабо изменяется на поперечных расстояниях, меньших радиуса первой зоны Френеля  $r_1 = (\lambda z_1)^{1/2}$ . Для E = 16 кэВ и на расстоянии  $z_1 = 30$  см имеем  $r_1 = 4.8$  мкм. Практически все микротрубки имеют поперечный диаметр  $2R < r_1$ . А это значит, что мы можем при вычислении интеграла пренебречь членом  $\pi(x_1/r_1)^2$  в фазе пропагатора, что как раз является приближением дифракции Фраунгофера.

С учетом указанных приближений для функции (4) получаем следующие выражения:

$$a(x) = 1 + \frac{2R}{i^{1/2}r_1} \exp\left(i\pi \frac{x^2}{r_1^2}\right) B(x), \qquad (5)$$

$$B(x) = \frac{1}{2} \int_{-1}^{1} dt \exp\left(-i\frac{x}{x_0}t\right) \left[\exp\left(iP\left(1-t^2\right)^{1/2}\right) - 1\right],$$

$$x_0 = \frac{r_1^2}{2\pi R}.$$
(6)

В работах [13, 14] был рассмотрен случай, когда  $P \ll 1$ . В этом случае экспоненту в квадратных



**Рис. 2.** Зависимость относительной интенсивности монохроматического излучения в центре изображения от безразмерного параметра *P* при различных значениях параметра *s*, равных 0.3 (кривая *I*), 0.6 (кривая *2*) и 0.9 (кривая *3*). Расчет выполнен по формулам (5) и (6) при x = 0.

скобках подынтегрального выражения в формуле (6) можно разложить в степенной ряд и ограничиться первым членом разложения. Тогда получаем, что характерный размер центральной области равен  $2r_1$ , а контраст этой области светлый, т.е. относительная интенсивность в центре больше единицы.

Легко понять, что при значениях параметра  $s = 2R/r_1 \ll 1$  размер центральной области определяется универсальной экспонентой в формуле (5), а функция B(x) слабо зависит от своего аргумента в этой области при всех значениях P, так как  $x_0 > r_1$ . Однако знак контраста, очевидно, зависит от значения Р. С другой стороны, мы имеем следующую формулу  $P = P_0 / \sin \alpha$ , где  $\alpha -$ угол между осью микротрубки и направлением пучка СИ, а  $P_0$  – значение P при перпендикулярной ориентации. Даже если  $P_0 \ll 1$ , то при уменьшении угла α можно получить обратную ситуацию, когда  $P \ge 1$ . Рассмотрим относительную интенсивность  $I(0) = |a(0)|^2$  в центре изображения как функцию параметра Р при различных значениях параметра s. Аналитическое выражение для интеграла (6) имеет сложный вид и не пригодно для анализа.

На рис. 2 показаны кривые зависимости I(0) от P, полученные в результате численного расчета для s = 0.3, 0.6, 0.9. Как следует из результатов расчета, при малых значениях P, не превышающих единицу, изображение в центре имеет светлый контраст, величина которого пропорциональна как P, так и s. Этот результат был получен в [13, 14] аналитически. Однако в процессе последующего увеличения значения параметра P ин-

ПОВЕРХНОСТЬ. РЕНТГЕНОВСКИЕ, СИНХРОТРОННЫЕ И НЕЙТРОННЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ № 10 2012

КОН и др.



**Рис. 3.** Кривые зависимости относительной интенсивности белого пучка СИ от поперечной координаты *x* при разных углах между осью микротрубки и направлением пучка СИ. Значения углов в градусах указаны на графиках. Расчет выполнен по программе FIMTIM для типичных значений параметров, соответствующих экспериментальным условиям.

тенсивность в центре достигает максимума и затем уменьшается до отрицательных значений. То есть знак контраста меняется, из светлого он преобразуется в темный. Интересно, что зависимость имеет осциллирующий характер, т.е. с ростом P темный контраст снова преобразуется в светлый и наоборот.

Для сравнения расчетных монохроматических изображений с изображениями, полученными в экспериментах с белым пучком СИ, необходимо проводить суммирование кривых, соответствующих разным длинам волн λ с учетом реального спектра излучения. Так как параметр Р линейно зависит от  $\lambda$  (см. (3), где  $\delta \propto \lambda^2$ ), то при больших значениях *P* и с учетом большой ширины спектра излучения от поворотного магнита заметить осцилляции контраста в зависимости от угла наклона α невозможно, и при малых углах наклона контраст всегда черный. Этот результат следует из расчетов по программе FIMTIM, показанных на рис. 3. На рисунке даны профили интенсивности для микротрубки с круглым сечением и диаметром сечения 3 мкм на расстоянии 30 см от образца. Все остальные параметры для источника СИ в г. Поханг стандартные: эффективный размер источника 60 мкм, расстояние от источника до образца 34 м, толщина образца пластины SiC 490 мкм.

На рис. 3 представлены шесть кривых при различных значениях углах наклона оси микротрубки к направлению пучка СИ. Эти значения в градусах показаны на графиках. Первая кривая соответствует перпендикулярной ориентации. В этом случае контраст относительно слабый, и в центре интенсивность выше фона: изображение светлое. При уменьшении угла наклона контраст сначала увеличивается, оставаясь таким же по форме, затем постепенно интенсивность в центре изображения уменьшается, контраст становится темным, а при совсем малых значениях угла наклона контраст снова уменьшается по величине.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Фазово-контрастные изображения микротрубок в карбиде кремния изменяют знак контраста при вращении образца в пучке СИ. Причиной этого эффекта является изменение направления оси микротрубки таким образом, что она составляет малый угол с направлением пучка. В этом случае увеличивается размер продольного сечения трубки пучком. При использовании моно-хроматического излучения зависимость имеет осциллирующий характер. В белом СИ суммирование кривых, соответствующих разным длинам волн  $\lambda$  с учетом реального спектра излучения приводит к тому, что осцилляции усредняются, и результирующий контраст всегда черный.

Эффект, установленный и описанный в данной работе, не препятствует исследованию морфологии микрообъектов в белом пучке СИ. Зная причину, можно приготовить образец и провести эксперимент таким образом, чтобы смена контраста не мешала реконструкции трехмерных томографических изображений. Моделирование изображений подтверждает выводы теории дефектов о реакциях микротрубок в местах их плотных скоплений. Вступая в реакции, микротрубки движутся параллельно фронту роста в направлении друг к другу и к другим дефектам. Оценки углов наклона, при которых наступает черный контраст, не противоречат величине отклонений микротрубок от оси роста, обусловленных реакциями [6–9].

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант №10-02-00047а) и программы Creative Research Initiatives (Functional X-ray Imaging) MEST/KOSEF Республики Корея.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. *Huang X.R., Dudley M., Vetter W.M. et al.* // Appl. Phys. Lett. 1999. V. 74. P. 353.
- Heindl J., Dorsch W., Strunk H.P. et al. // Phys. Rev. Lett. 1998. V. 80. P. 740.
- 3. Frank F.C. // Acta Crystallogr. 1951. V. 4. P. 497.
- 4. *Kamata I., Tsuchida H., Jikimoto T. et al.* // Jpn. J. Appl. Phys. 2000. Part 1. V. 39. P. 6496.

- Argunova T.S., Gutkin M.Yu., Je J.H. et al. // J. Mater. Res. 2002. V. 17. P. 2705.
- Gutkin M.Yu., Sheinerman A.G., Argunova T.S. et al. // J. Appl. Phys. 2006. V. 100. P. 093518.
- Gutkin M.Yu., Sheinerman A.G., Argunova T.S. et al. // Phys. Rev. B. 2007. V. 76. P. 064117.
- Gutkin M.Yu., Sheinerman A.G., Smirnov M.A. et al. // Appl. Phys. Lett. 2008. V. 93. P. 151905.
- 9. Gutkin M.Yu., Sheinerman A.G., Argunova T.S. // Phys. Status Solidi. C. 2009. V. 6. P. 1942.
- Kohn V.G., Argunova T.S., Je J.-H. // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 91. P. 171901.
- 11. *Argunova T.S., Kohn V.G., Je J.-H.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2008. № 12. Р. 48.
- 12. Argunova T., Kohn V., Jung J-W., Je J.-H. // Phys. Status Solidi. A. 2009. V. 206. P. 1833.
- Kohn V.G., Argunova T.S., Je J.-H. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2010. V. 43. P. 442002.
- Kohn V.G., Argunova T.S., Je J.-H. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2011. № 1. Р. 5.

# Reason of a Contrast Change in SR-Images of Micropipes in SiC V. G. Kohn, T. C. Argunova, Jung Ho Je

We propose a theoretical explanation of the peculiarity of experimental phase-contrast images of micropipes in silicon carbide obtained with "white" beam of synchrotron radiation (SR) which consists of the fact, that various micropipes or various parts of the same micropipe have the contrast of different colors. Very often the contrast is white (the intensity is higher than background) in the center and black at the boundaries, but sometimes the sign is varied, and the contrast becomes black in the center and white at the boundaries. We discuss the results of the experiments made at the SR source in Pohang (Republic of Korea). The reason of the contrast change can be a change of the angle between the micropipe axis and the direction of the SR beam. If the angle is not very small, the phase incursion inside the micropipe section is small, and the contrast is standard. If the angle becomes very small, then the longitudinal size of the section of the micropipe by the beam increases, and this leads to oscillations of the wave field inside the section. At the large distance and in the "white" beam these oscillations are averaged resulting in the black contrast.