

07,03

## Механизмы формирования морфологических особенностей микротрубок в объемных кристаллах карбида кремния

© Т.С. Аргунова<sup>1</sup>, М.Ю. Гуткин<sup>2–4</sup>, В.Г. Кон<sup>5</sup>, Е.Н. Мохов<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Институт проблем машиноведения РАН,  
Санкт-Петербург, Россия

<sup>3</sup> Санкт-Петербургский государственный политехнический университет,  
Санкт-Петербург, Россия

<sup>4</sup> Университет ИТМО,  
Санкт-Петербург, Россия

<sup>5</sup> НИЦ „Курчатовский институт“,  
Москва, Россия

E-mail: argunova2002@mail.ru

(Поступила в Редакцию 16 октября 2014 г.)

Экспериментально и теоретически изучены новые морфологические особенности дислокационных микротрубок в монокристаллах SiC. Показано, что цилиндрическая форма микротрубок неустойчива, а размеры сечений микротрубок изменяются вдоль их осей. Экспериментальные результаты получены путем измерения изображений микротрубок методом рентгеновской фазово-контрастной микроскопии на источнике высоко-когерентного синхротронного излучения. Размеры сечений микротрубок определены при помощи компьютерного моделирования их изображений. Предложена теоретическая модель превращения дислокаций в микротрубки за счет неравновесных процессов трубочной диффузии и коагуляции вакансий на дислокациях, параллельных оси роста кристалла.

М.Ю. Гуткин благодарит РФФ (грант № 14-29-00086) и Е.Н. Мохов благодарит РФФИ (грант № 13-02-00802) за поддержку исследований.

### 1. Введение

Гексагональный карбид кремния (SiC) — перспективный материал для изготовления силовых полупроводниковых приборов. Благодаря совершенствованию технологий производства слитков SiC большого диаметра его применение постепенно становится одним из основных направлений развития сильноточной электроники. В последнее время диаметр коммерческих монокристаллов SiC вырос с 50 до 100–150 mm, а плотность дефектов снизилась в них на несколько порядков.

В частности, плотность микропор, прорастающих по всей длине слитка, стала меньше  $1 \text{ cm}^{-2}$  [1]. Эти поры имеют форму трубок и, как принято считать, формируются на супердислокациях с большими векторами Бюргерса. Модель супердислокации с полым ядром была предложена в середине прошлого века Франком [2]. Из условия минимизации погонной энергии винтовой дислокации с вектором Бюргерса величиной  $b$  и полым ядром радиусом  $r_0$  Франк вывел линейное соотношение между  $r_0$  и  $b^2$ :  $r_0 = (Gb^2)/8\pi^2\gamma$ , где  $G$  — модуль сдвига кристалла в приближении его изотропии, а  $\gamma$  — удельная энергия его свободной поверхности. Справедливость этой формулы нашла экспериментальное подтверждение в ряде работ. Измерив  $r_0$  при помощи сканирующей электронной микроскопии (SEM) [3] или атомно-силовой микроскопии (AFM) [4–7], а вектор Бюргер-

са — методами AFM [4,5], топографии в синхротронном излучении (СИ) [3], просвечивающей электронной микроскопии (ТЕМ) [6] или поляризационно-оптической микроскопии (PLM) [8], авторы [3–6,8] построили зависимость  $r_0 \sim b^2$  и определили поверхностную энергию  $\gamma$  кристалла. При этом, однако, для  $G = 200 \text{ GPa}$  были получены существенно разные значения  $\gamma$  (в единицах  $\text{J/m}^2$ ): 4, 0.20, 0.14, 0.79, 0.93 и 2 для значений  $r_0$  (в микрометрах) соответственно из интервалов: 0.09–0.16, 0.05–2.1, 0.025–6, 0.1–6 и 0.05–0.9.

В результате исследования характеристик микротрубок были разработаны различные модели их формирования. В работе [6] авторы предложили модель образования супердислокаций смешанного типа на скоплениях частичных дислокаций. Другие исследователи привели доказательства в пользу того, что полые ядра принадлежат дислокациям винтового типа [9], которые могут зарождаться на включениях второй фазы [10] или формироваться в процессе слияния зародышей на начальной стадии роста кристалла [7]. Каждая модель предлагала свой ответ на вопрос о том, почему элементарные дислокации (при  $b = 1c$ , где  $c$  — параметр решетки SiC) с векторами Бюргерса одного знака притягиваются друг к другу, образуя супердислокации? В качестве причин рассматривались реакции в местах плотных скоплений дислокаций — на границах разориентированных доменов [11], у включений других политипов [5,12] и на

кластерах дефектов упаковки [6], — а также эффект отталкивания между ступенями спиралей роста на растущей поверхности [12].

Прогресс в производстве высококачественных кристаллов подтвердил справедливость перечисленных выше моделей. Уменьшение количества включений второй фазы и плотности дефектных границ, а также улучшение качества структуры кристалла на начальной стадии роста привели к существенному снижению плотности микротрубок, а в некоторых случаях — к их отсутствию [1]. Однако есть основания считать, что не все особенности формирования микротрубок уже нашли свое объяснение, и для успешной борьбы с этими дефектами требуются дополнительные исследования.

Прежде всего, большое различие значений поверхностной энергии  $\gamma$  у разных авторов позволяет предположить, что формирование микротрубок в значительной мере определяется кинетикой процессов зарождения и взаимодействия дефектов, а не термодинамикой Франка. В одной из относительно ранних работ [13] было отмечено, что дислокации способны превратиться в микротрубки под влиянием изменения условий роста, в частности, температуры и давления, которые могут спровоцировать миграцию точечных дефектов по ядрам дислокаций. В настоящее время установлено, что кинетические процессы зарастания микротрубки можно объяснить диффузионным оттоком вакансий из области микротрубки [14].

Во-вторых, экспериментальные данные в пользу каждой из моделей были получены методами, возможности которых имеют различные ограничения. Поверхностно-чувствительные методы SEM и AFM выявляют ямки и спирали роста в местах выхода микротрубок на ростовую поверхность. Однако форма ямки не отражает форму микротрубки на всем пути ее распространения в кристалле. Оптическая микроскопия не способна разрешить детали морфологии мелких микротрубок. Метод ТЕМ, напротив, имеет слишком высокое разрешение для изображения микротрубок с радиусом в несколько микрон, распределенных с малой плотностью. Рентгеновская топография и PLM не показывают форму трубки. В настоящее время только рентгеновский фазовый контраст, который можно наблюдать на источниках СИ в условиях высокой пространственной когерентности, позволяет изучать размеры и форму микротрубок в объеме кристаллов [15]. Сочетая фазовый контраст с топографией в Си, можно получать наиболее полную информацию об этих дефектах [16].

Наконец известно, что устранение причины, вызвавшей зарождение микротрубки, не всегда приводит к зарастанию самой микротрубки. В частности, включения других политипов [17,18] и щелевидные поры, возникающие по их границам [19,20] зарастают по механизмам, рассмотренным, например, в [16]. Однако порожденные включениями дислокации могут превращаться в микротрубки, устойчиво прорастающие по всей остальной длине слитка. До сих пор считалось, что элементарные

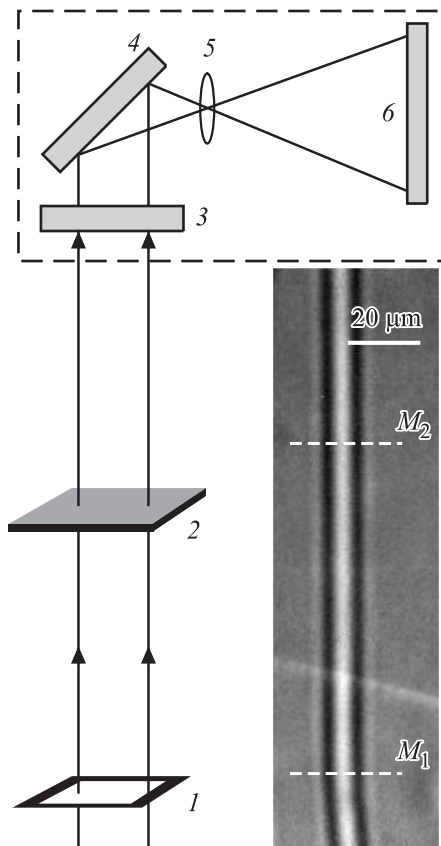
дислокации, порожденные упругими напряжениями на границах политипов, образуют супердислокации путем реакций [5,12], и микротрубки — по модели Франка [2].

Используя метод рентгеновской фазово-контрастной микроскопии в сочетании с компьютерным моделированием изображений, в настоящей работе мы исследовали микротрубки на границах включений других политипов. Оказалось, что, вопреки модели Франка, они могут иметь не только круглое, но и эллиптическое сечение, размеры которого изменяются вдоль оси трубки. Эти и другие интересные особенности формирования микротрубок объясняются ниже в рамках новой модели формирования микротрубок путем трубочной диффузии и коагуляции вакансий на ядрах дислокаций.

## 2. Методика эксперимента

Рентгеновские фазово-контрастные изображения формируются благодаря дифракции СИ на образце, содержащем микрофлуктуации электронной плотности, например, микропоры. Локально изменяя фазу падающей плоской волны, неоднородности формируют дифракционную картину, которую можно регистрировать как в ближнем, так и в дальнем поле, то есть либо контурным изображением, либо по интерференции рассеянной дефектами волны с невозмущенным излучением [21]. Падающее излучение должно быть когерентным. Пространственная когерентность определяется величиной  $\alpha = S/z_0$ , где  $S$  — поперечный размер источника и  $z_0$  — расстояние от источника до образца. Временная когерентность в отсутствие монохроматора определяется шириной спектра СИ, который обусловлен энергией электронов. Со стороны высоких энергий интенсивность СИ уменьшается с ростом энергии естественным образом. Со стороны малых энергий излучение поглощается всеми предметами на пути пучка, включая образец. В результате формируется спектральный пик с максимумом при определенной энергии  $E$  и полушириной  $\Delta E$ . На станции 6D-источника СИ Pohang Light Source (г. Поханг, Южная Корея) поворотный магнит обеспечивает вертикальный размер фокуса  $S = 60 \mu\text{m}$  на расстоянии  $z_0 = 32 \text{ m}$  от образца. В этом случае пространственная длина когерентности  $T_s = \lambda/\alpha = 42 \mu\text{m}$ , что существенно больше диаметра обычных микротрубок в SiC (до  $10 \mu\text{m}$ ). Для пластин SiC толщиной  $\sim 500 \mu\text{m}$  спектральный пик с полушириной  $\Delta E = 24 \text{ keV}$  ( $\Delta\lambda = 0.52 \text{ \AA}$ ) имел максимум при  $E = 16 \text{ keV}$  ( $\lambda = 0.775 \text{ \AA}$ ), и временная длина когерентности  $T_t$  составляла  $1.2 \text{ \AA}$  [15,22].

Схема измерений показана на рис. 1. Щель (1) формирует рентгеновский пучок заданного размера. Пучок проходит сквозь образец (2), за которым возникают интерференционные изображения микротрубок. Их регистрирует фазово-контрастный микроскоп, состоящий из элементов внутри прямоугольника, нарисованного пунктиром. Кристалл-сцинтиллятор (3) преобразует ди-



**Рис. 1.** Схема эксперимента. 1 — входная щель, 2 — образец (пластина SiC), 3 — кристалл-сцинтиллятор, 4 — зеркало, 5 — оптический объектив, 6 — детектор. Направление пучка СИ указано стрелками. На вставке показано фазово-контрастное изображение микротрубки.

фрагированное излучение в видимый свет. Зеркало (4) направляет свечение сцинтиллятора в оптический объектив (5), который формирует изображение на матрице детектора (6). Объектив не может повысить разрешение интерференционной картины, однако, увеличивая ее до размера поля зрения детектора, он эффективно уменьшает размер пиксела. Например, если детектор имеет разрешение  $3296 \times 2472$  пикселей и размер пиксела  $5.5 \mu\text{m} \times 5.5 \mu\text{m}$ , то оптическое увеличение  $20\times$  делает поле зрения равным  $906 \mu\text{m} \times 680 \mu\text{m}$ , эффективно понижая размер пиксела до  $0.275 \mu\text{m}$ .

Профили распределения относительной интенсивности измерялись поперек изображений микротрубок при помощи программы ImageJ. Для расчета диаметров сечения микротрубок применялась программа FIMTİM (Fit Micro-Tube Image) [15,23]. Эта программа выполняет численный расчет профилей интенсивности для монохроматических гармоник излучения СИ на сетке точек в интервале от 5 до 40 keV с последующим их суммированием с учетом реального спектра [15] и поглощения. Диаметры эллиптического сечения микротрубки пучком ( $D$  — поперек и  $D_0$  — вдоль пучка

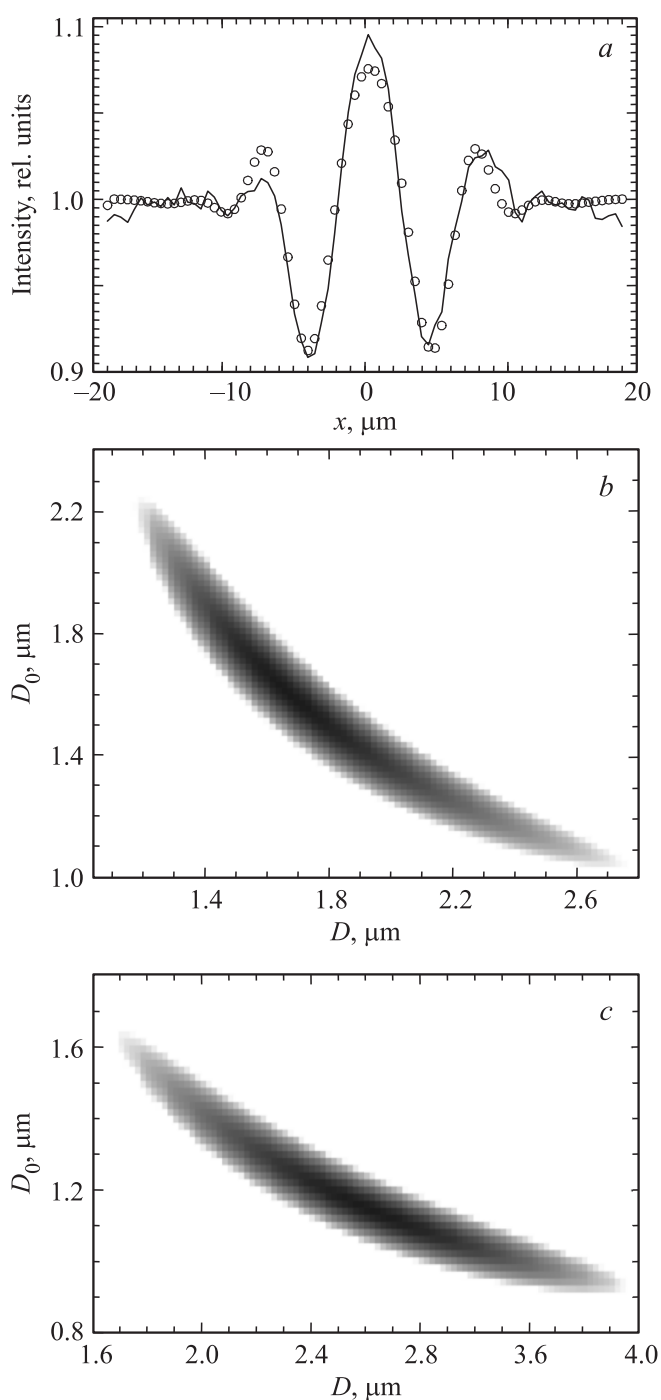
СИ) определялись автоматически из условия совпадения теоретического и экспериментального профилей интенсивности. Для оценки точности результата программа рассчитывала зависимость  $\chi^2 - \chi_{\min}^2$ , где  $\chi_{\min}^2$  — минимум суммы квадратов отклонений от искомым параметров  $D$  и  $D_0$ , и строила карту  $\chi^2(D, D_0) - \chi_{\min}^2$  вблизи точки минимума [22].

Пластины SiC были приготовлены из кристалла поли-типа 4H, выращенного методом сублимации [17]. Рост в атмосфере Ag при температуре  $2100^\circ\text{C}$  происходил со скоростью  $350 \mu\text{m/h}$ . Кристалл содержал слоистые включения политипа 6H. Слои 6H-SiC были расположены примерно посередине слитка 4H-SiC параллельно плоскости (0001) и имели малую толщину вдоль оси роста [0001]. Основная поверхность образцов, вырезанных параллельно оси роста, пересекала границы включений. По данным оптической микроскопии (в статье не показанным) в области между затравкой и границами включений микротрубок не было. Они появлялись вблизи включений — так же, как, например, в работах [12,16] — и распространялись вплоть до свободной поверхности кристалла. Перед измерением изображений поверхность образцов тщательно полировалась для удаления нарушенного слоя и шероховатости. В процессе измерений образцы выставлялись перпендикулярно пучку так, чтобы оси микротрубок имели горизонтальное положение. В этом случае пространственная когерентность определялась минимальным размером источника в вертикальном направлении:  $S = 60 \mu\text{m}$ .

### 3. Экспериментальные результаты

На вставке (рис. 1) показано фазово-контрастное изображение микротрубки, расположенной перпендикулярно пучку СИ. Изображение получено в дальнем поле, потому что диаметр первой зоны Френеля  $2r_1 = 2(\lambda z_1)^{1/2} = 11 \mu\text{m}$  (где  $\lambda = 0.775 \text{ \AA}$  и расстояние от детектора до образца  $z_1 = 40 \text{ cm}$ ) больше, чем диаметры микротрубок [3,5,6,8]. Оно имеет вид универсального профиля усредненной интенсивности [24]: центральный пик и сильно ослабленные боковые осцилляции, состоящие из минимума и максимума. Расстояние между осцилляциями 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 вдоль оси микротрубки:  $M_1$  и  $M_2$ . Поскольку изображение в дальнем поле целиком определяется первой зоной Френеля, изменение формы и размеров сечения сказывается на структуре изображения не только поперек, но



**Рис. 2.** Результаты моделирования изображения микротрубки на рис. 1. *a* — Экспериментальный (символы) и расчетный (сплошная линия) профили относительной интенсивности на уровне  $M_1$ , совпавшие с наилучшей точностью  $\chi_{\min}^2 = 7.745 \cdot 10^{-5}$ . *b, c* — Карты распределения минимума суммы квадратов отклонений  $\chi^2 - \chi_{\min}^2$  в зависимости от искоемых параметров  $D$  и  $D_0$  вблизи точки минимума соответственно на уровнях  $M_1, M_2$ .

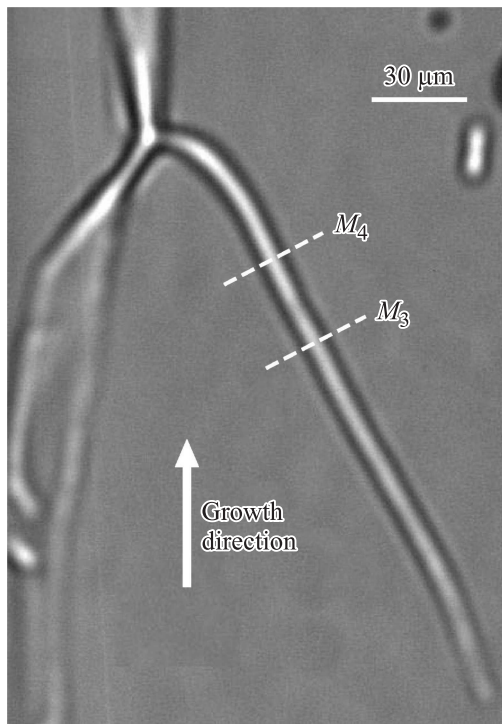
и вдоль оси в пределах  $2r_1$ . Сколь бы резкими ни были скачки диаметров, их невозможно зафиксировать путем подгонки одномерных сечений, когда расстояние между

уровнями  $< 2r_1$ . Поэтому расстояние между  $M_1$  и  $M_2$  было выбрано заведомо больше:  $8.2r_1 = 90 \mu\text{m}$ .

Используя программу FIMTİM, мы определили диаметры  $D$  и  $D_0$  путем сравнения расчетных профилей интенсивности с экспериментальными. Результаты расчетов для уровня  $M_1$  показаны на рис. 2. Отнормированная экспериментальная кривая на рис. 2, *a* изображена символами. Она совпала с расчетной кривой, нарисованной сплошной линией, при  $\chi_{\min}^2 = 7.745 \cdot 10^{-5}$ . При этом значения диаметров составляли:  $D = 1.76 \mu\text{m}$  и  $D_0 = 1.52 \mu\text{m}$ . На рис. 2, *b* приведена карта распределения  $\chi^2(D, D_0) - \chi_{\min}^2$  вблизи точки минимума. На этой карте черный и белый цвета соответствуют  $\chi_{\min}^2 = 7.824 \cdot 10^{-5}$  и  $\chi_{\max}^2 = 9.290 \cdot 10^{-5}$ . Все значения  $\chi^2 > \chi_{\max}^2$  заменялись на  $\chi_{\max}^2$ . Область малых величин  $\chi^2$  имеет вид почти симметричной гиперболы с минимальным размером вдоль направления  $D = D_0$  и максимальным — в перпендикулярном направлении. Отсутствие локализации в области минимума отражает 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 [24]. Перемножая  $D$  и  $D_0$ , получаем площадь сечения на уровне  $M_1$ :  $\sigma_1 = \pi DD_0 = 8.4 \mu\text{m}^2$ . Небольшое искажение симметрии карты вдоль осей  $D$  и  $D_0$  ( $D/D_0 = 1.2$ ) показывает, что сечение имеет слегка овальную форму.

Интересно, что для уровня  $M_2$  программа определила совсем другие значения диаметров:  $D = 2.54 \mu\text{m}$  и  $D_0 = 1.18 \mu\text{m}$ . Соответствующую этому уровню область минимума можно видеть на рис. 2, *c*. Теперь гиперболическое распределение значений  $\chi^2$  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 на уровне  $M_2$ :  $\sigma_2 = 9.4 \mu\text{m}^2$ .

Микротрубка на рис. 1 параллельна оси роста кристалла. Однако некоторые другие микротрубки отклонялись от оси роста на довольно большие углы. Изображение одной такой наклонной микротрубки показано на рис. 3. Вообще говоря, для наклонных микротрубок параметры их сечений пучком СИ не равны истинным значениям диаметров. Допустим, что микротрубка на рис. 3 имеет круглое сечение с диаметром  $2r_0$ . Пусть ось трубки образует угол  $\psi$  с вертикальным направлением, параллельным оси роста кристалла, и не имеет углов наклона относительно других осей. Параметры  $D$  и  $D_0$ , которые вычисляет программа FIMTİM по профилям интенсивности, измеренным перпендикулярно оси роста кристалла (рис. 3), 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 микротрубки, если повернуть изображение на рис. 3 по часовой стрелке на угол  $\psi$ . В этом случае программа FIMTİM вычислит правильные значения диаметров. Однако следует иметь в виду, что



**Рис. 3.** Изображение наклонной микротрубки. Моделирование профилей интенсивности выполнено для уровней  $M_3$  и  $M_4$ . Направление роста кристалла указано стрелкой.

поворот изображения скажется на точности их определения. Программа учитывает размер источника, исходя из минимальной (вертикальной) проекции фокуса  $S$ , а наличие угла поворота  $\psi$  увеличивает этот размер на неопределенную величину.

Профили интенсивности были измерены поперек наклонной микротрубки путем поворота изображения при помощи программы ImageJ. Расстояние между уровнями было небольшим,  $2.6r_1 = 29\ \mu\text{m}$ , но достаточным для того, чтобы программа заметила изменения в сечении. По данным моделирования на уровне  $M_3$ , наклонная микротрубка имеет практически круглое сечение:  $D = 1.96\ \mu\text{m}$  и  $D_0 = 1.84\ \mu\text{m}$ ;  $D/D_0 = 1.06$ . Однако на уровне  $M_4$  сечение становится сильно эллиптическим:  $D = 5.32\ \mu\text{m}$  и  $D_0 = 1.32\ \mu\text{m}$ ;  $D/D_0 = 4.03$ . Площади сечения на уровнях  $M_3$  и  $M_4$  равны соответственно  $\sigma_3 = 11.3\ \mu\text{m}^2$  и  $\sigma_4 = 22.0\ \mu\text{m}^2$ .

Параметры микротрубок: диаметры  $D$  и  $D_0$  (соответственно поперек и вдоль пучка СИ) и площадь сечения  $\sigma$  на уровнях  $M_i$  ( $i = 1 - 4$ ), определенные с точностью  $\chi_{\text{min}}^2$  по программе FIMTIM

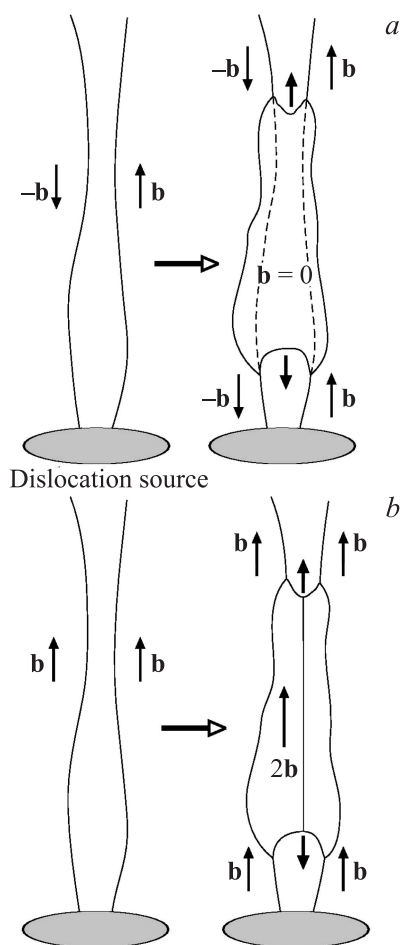
$M_i$	$D, \mu\text{m}$	$D_0, \mu\text{m}$	$\sigma, \mu\text{m}^2$	$\chi_{\text{min}}^2$
$M_1$	1.76	1.52	8.4	$7.744 \times 10^{-5}$
$M_2$	2.54	1.18	9.4	$7.295 \times 10^{-5}$
$M_3$	1.96	1.84	11.3	$8.996 \times 10^{-5}$
$M_4$	5.32	1.32	22.0	$4.501 \times 10^{-5}$

Параметры микротрубок, полученные в результате моделирования, представлены в таблице. Изучив много других микротрубок в этом кристалле  $4H\text{-SiC}$  и других подобных кристаллах, а также в кристаллах  $6H\text{-SiC}$  с включениями политипов  $4H$  и  $15R$ , мы пришли к выводу, что многие микротрубки имеют описанные выше морфологические особенности. Во-первых, размеры сечений микротрубок изменяются вдоль их осей. Во-вторых, у многих микротрубок наблюдаются отклонения от цилиндрической формы, характерной для полости вокруг ядра винтовой супердислокации. В-третьих, цилиндрическая форма некоторых микротрубок является неустойчивой и может переходить в эллиптическую. В-четвертых, на микротрубках наблюдаются локальные искривления. Наконец, они могут внезапно обрываться в кристалле. Эти особенности нельзя объяснить при помощи уже известных моделей образования микротрубок [6,7,10,12]. В следующем разделе обсуждаются причины отклонения формы микротрубок от равновесной цилиндрической, предсказанной Франком [2], и предлагается вакансионный механизм формирования неравновесных микротрубок.

#### 4. Обсуждение результатов

Один из возможных сценариев формирования микротрубок с переменным сечением отводит ведущую роль коагуляции вакансий и включает в себя следующие основные стадии: (1) гетерогенное образование дислокаций, вытянутых вдоль оси  $c$  и достигающих фронта роста кристалла; (2) трубчатая диффузия вакансий от поверхности в глубь кристалла по ядрам этих дислокаций; (3) коагуляция этих вакансий вокруг дислокаций; (4) формирование вокруг дислокаций сплошной полости (микротрубки) и выравнивание ее поверхности путем поверхностной диффузии вакансий. Диффузия, коагуляция и последующие поглощение-испускание микротрубкой вакансий являются сильно неравновесными процессами, так что формирование микротрубок в значительной мере определяется кинетикой их протекания, а не термодинамикой Франка [2].

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. 4, *a*) или пара дислокаций одного знака (рис. 4, *b*). 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



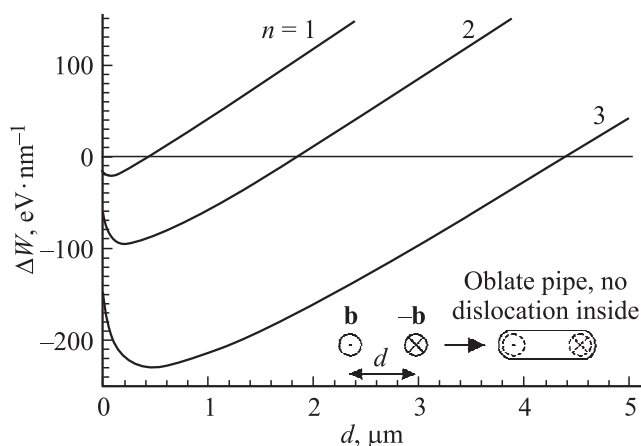
**Рис. 4.** Схематическое изображение образования сплющенной микротрубки (а) на дислокационном диполе и (б) на паре дислокаций одного знака. Черные жирные стрелки указывают направление разрастания микротрубки вдоль дислокационных линий за счет поглощения и поверхностной диффузии вакансий.

такой „сплющенной“ микротрубки, а отклонения дислокаций в направлениях под углом к соединяющей их воображаемой линии или, тем более, закручивание дислокаций вокруг общей оси будут восприниматься как закручивание „сплющенной“ микротрубки.

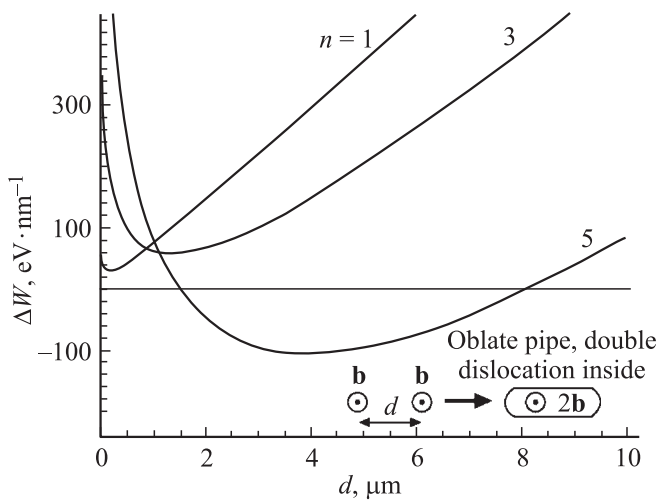
Оценим условия, при которых формирование таких сплющенных микротрубок будет энергетически выгодным. В случае дислокационного диполя охват микротрубкой обеих дислокаций имеет то очевидное преимущество, что при этом происходит аннигиляция дислокаций внутри микротрубки, и дислокационный диполь превращается в две дислокационные полупетли — „верхнюю“ и „нижнюю“ (в этих полупетлях дислокации с векторами Бюргерса  $\mathbf{b}$  и  $-\mathbf{b}$  соединяются друг с другом ступеньками на соответственно „верхней“ и „нижней“ поверхностях микротрубки). Отсюда — выигрыш в упругой энергии дислокаций и в энергии их ядер. В то же время увеличение объема микротрубки, необходимое для охвата всего диполя, ведет к увеличению энергии

свободной поверхности микротрубки, т. е. к некоторому проигрышу в общей энергии системы. Баланс выигрыша и проигрыша в общей энергии определяет критический размер микротрубки, который она не может превысить. В исходном состоянии (до появления микротрубки) общую погонную энергию дислокационного диполя можно оценить величиной  $W_1 = Gb^2/(2\pi)[\ln(d/r_c) + 2Z]$ , 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 микротрубки и аннигиляции диполя энергию системы (на единицу длины исчезнувших дислокаций) можно оценить как  $W_2 = \gamma L$ , где  $L$  — средний периметр сечения микротрубки. Образование такой микротрубки энергетически выгодно, если изменение погонной энергии системы  $\Delta W = W_2 - W_1 = \gamma L - Gb^2/(2\pi)[\ln(d/r_c) + 2Z] < 0$ , откуда сразу получаем оценку для критического периметра  $L_c$ , такого что  $L < L_c = Gb^2/(2\pi\gamma)[\ln(d/r_c) + 2Z]$ .

Зависимость изменения энергии  $\Delta W$  от плеча диполя  $d$  показана на рис. 5 для значений параметров, взятых для 4H-SiC:  $c = 1$  nm,  $G = 165$  GPa,  $\gamma = 0.2$  J/m<sup>2</sup> [3]. Кривые построены для трех значений вектора Бюргерса:  $b = nc$  при  $n = 1, 2$  и  $3$ , причем в качестве параметра обрезания брали  $r_c = b$ . В расчетах периметр сечения микротрубки  $L$  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. 5, наибольший выигрыш в энергии достигается при  $d \sim 0.07, 0.21$  и  $0.47$   $\mu\text{m}$  соответственно для  $n = 1, 2$  и  $3$ . В то же время образование микротрубки остается энергетически выгодным при значительно бóльших значениях  $d$ , при  $d < d_c = L_c/2.5 \sim 0.40, 1.82$  и  $4.40$   $\mu\text{m}$  соответственно для  $n = 1, 2$  и  $3$ . Такие размеры сечения



**Рис. 5.** Зависимость изменения энергии  $\Delta W$  от плеча дислокационного диполя  $d$  для  $b = nc$  ( $n = 1, 2$  и  $3$ ) при  $c = 1$  nm,  $G = 165$  GPa,  $\gamma = 0.2$  J · m<sup>-2</sup> и  $\eta = 2.5$ . На вставке показана схема аннигиляции диполя при образовании вокруг него сплющенной микротрубки.



**Рис. 6.** Зависимость изменения энергии  $\Delta W$  от расстояния между дислокациями  $d$  для  $b = nc$  ( $n = 1, 3$  и  $5$ ) при  $c = 1$  nm,  $G = 165$  GPa,  $\gamma = 0.2$  J·m<sup>-2</sup> и  $\eta = 2.5$ . На вставке показана схема объединения дислокаций при образовании вокруг них сплющенной микротрубки.

сплющенных микротрубок часто наблюдаются в эксперименте.

В случае образования сплющенной микротрубки вокруг пары дислокаций одного знака имеем  $W_1 = Gb^2/(2\pi)[\ln\{R^2/(dr_c)\} + 2Z]$  и  $W_2 \approx \gamma L + 2Gb^2/\pi \ln(2R/d)$ , что дает изменение энергии  $\Delta W = W_2 - W_1 = \gamma L + Gb^2/(2\pi)[\ln(16R^2r_c/d^3) - 2Z]$ . Здесь  $R$  — параметр обрезания дальнедействующего упругого поля спаренной дислокации, в качестве которого можно принять половину расстояния между дислокациями противоположного знака в образце. В численных расчетах принималось  $R = 10 \mu\text{m}$ , что соответствует плотности дислокаций  $\sim 10^6 \text{ cm}^{-2}$ , характерной для границ включений других политипов. Зависимость изменения энергии  $\Delta W$  от расстояния между дислокациями  $d$  показана на рис. 6 для тех же значений параметров, что и для кривых на рис. 5. Кривые на рис. 6 построены для трех значений вектора Бюргерса:  $b = nc$  при  $n = 1, 3$  и  $5$ . Как видно из рис. 6, образование сплющенной микротрубки вокруг пары дислокаций с векторами Бюргерса, равными  $1c$  и  $3c$ , энергетически невыгодно. Чтобы такая микротрубка сформировалась, необходимо, чтобы величина векторов Бюргерса составляла бы не менее  $5c$ . При  $b = 5c$  размер микротрубки может варьироваться примерно от  $1.5$  до  $8.2 \mu\text{m}$ , а наибольший выигрыш в энергии соответствует  $d \approx 4 \mu\text{m}$ . Таким образом, в отличие от предыдущего случая дислокационного диполя, когда образование сплющенной микротрубки энергетически выгодно при любом значении вектора Бюргерса и при  $d < d_c$ , здесь мы имеем два критических условия формирования сплющенной 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 сплющенных микротрубок можно объяснить тем, что они охватывают сразу несколько (пучок) дислокаций, минимизируя при этом свою поверхность. При этом наибольший размер сечения микротрубки 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 микротрубки, 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 микротрубкой — 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 сплющенных микротрубок, наблюдаемых нами в эксперименте.

### 5. Заключение

Метод рентгеновской фазово-контрастной микроскопии позволяет наблюдать форму микротрубок на всем пути их распространения в объеме кристаллов. Компьютерное моделирование фазово-контрастных изображений обеспечивает определение размеров их сечений. Путем моделирования изображений большого количества микротрубок в кристаллах  $4H$ - и  $6H$ -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. Численные оценки критических величин, ответственных за формирование овальных полостей вокруг пучков дислокаций, хорошо согласуются с экспериментальными данными.

В качестве источников зарождения дислокаций были исследованы включения других политипов. Однако подобные процессы будут происходить в местах скопления дислокаций, обусловленных другими источниками. Избежать образования неравновесных микротрубок можно

путем снижения неоднородности в распределении дислокаций и уменьшения их плотности.

Неизвестные ранее морфологические особенности микротрубок были установлены исключительно благодаря количественному подходу к обработке фазово-контрастных изображений. Такой подход открывает новые возможности для исследования других структурно-неоднородных материалов, например AlN и GaN.

## Список литературы

- [1] C.R. Eddy, D.K. Gaskill Jr. *Science* **324**, 1398 (2009).
- [2] F.C. Frank. *Acta Cryst.* **4**, 497 (1951).
- [3] W. Si, M. Dudley, R. Glass, V. Tsvetkov, C. Carter. *J. Electron. Mater.* **26**, 128 (1997).
- [4] J. Giocondi, G.S. Rohrer, M. Skowronski, V. Balakrishna, G. Augustine, H.M. Hobgood, R.H. Hopkins. *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **423**, 539 (1996).
- [5] J. Heindl, W. Dorsch, R. Eckstein, D. Hofmann, T. Marek, St.G. Müller, H.P. Strunk, A. Winnacker. *J. Cryst. Growth* **179**, 510 (1997).
- [6] H.P. Strunk, W. Dorsch, J. Heindl. *Adv. Eng. Mater.* **2**, 386 (2000).
- [7] X. Ma. *J. Appl. Phys.* **99**, 063 513 (2006).
- [8] X. Ma. *Mater. Sci. Eng.: B* **129**, 216 (2006).
- [9] X.R. Huang, M. Dudley, W.M. Vetter, W. Huang, S. Wang, C.H. Carter Jr. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 353 (1999).
- [10] M. Dudley, X.R. Huang, W. Huang, A. Powell, S. Wang, P. Neudeck, M. Skowronski. *Appl. Phys. Lett.* **75**, 784 (1999).
- [11] P. Pirouz. *Phil. Mag. A* **78**, 727 (1998).
- [12] N. Ohtani, M. Katsuno, T. Fujimoto, T. Aigo, H. Yashiro. *J. Cryst. Growth* **226**, 254 (2001).
- [13] G. Augustine, McD. Hobgood, V. Balakrishna, G. Dunne, R.H. Hopkins. *Phys. Status Solidi: B* **202**, 137 (1997).
- [14] С.Ю. Давыдов, А.А. Лебедев. *ФТП* **45**, 743 (2011).
- [15] V.G. Kohn, T.S. Argunova, J.H. Je. *Appl. Phys. Lett.* **91**, 171 901 (2007).
- [16] T.S. Argunova, M.Yu. Gutkin, J.H. Je, V.G. Kohn, E.N. Mokhov. In: *Physics and Technology of Silicon Carbide Devices* / Ed. Y. Hijikata. Intech Publications, Rijeka, Croatia (2013). Ch. 2, P. 27.
- [17] Yu.A. Vodakov, A.D. Roenkov, M.G. Ramm, E.N. Mokhov, Yu.N. Makarov. *Phys. Status Solidi B* **202**, 177 (1997).
- [18] N. Ohtani, M. Katsuno, H. Tsuge, T. Fujimoto, M. Nakabayashi, H. Yashiro, M. Sawamura, T. Aigo, T. Hoshino. *Microelectron. Eng.* **83**, 142 (2006).
- [19] D. Siche, H.-J. Rost, J. Doerschel, D. Schulz, J. Wollweber. *J. Cryst. Growth* **237–239**, 1187 (2002).
- [20] M.Yu. Gutkin, A.G. Sheinerman, M.A. Smirnov, T.S. Argunova, J.H. Je, S.S. Nagalyuk, E.N. Mokhov. *J. Appl. Phys.* **106**, 123 515 (2009).
- [21] M. Born, E. Wolf. *Principles of optics*. 4-th Ed. Pergamon Press, London (1968). Ch. 10.
- [22] V.G. Kohn, T.S. Argunova, J.H. Je. *AIP Advances* **3**, 122 109 (2013).
- [23] Т.С. Аргунова, В.Г. Кон, J.H. Je. *Поверхность* **12**, 48 (2008).
- [24] В.Г. Кон, Т.С. Аргунова, J.H. Je. *Поверхность* **1**, 5 (2011).