

ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Исследование микропор в монокристаллах методом фазово-контрастного изображения на просвет в синхротронном излучении

Т.С. Аргунова, В.Г. Кон

Некоторые технически важные монокристаллы содержат микропоры различной формы, в том числе микротрубки, т.е. полые цилиндры с размером сечения от долей микрометра до нескольких микрометров. Описаны свойства таких объектов в монокристаллах карбида кремния и один из методов их наблюдения и исследования, а именно фазово-контрастное изображение на просвет в синхротронном излучении. Дополнительно дан обзор истории развития и современного состояния используемого метода.

Ключевые слова: монокристаллы, карбид кремния, микропоры, микротрубки, фазовый контраст, синхротронное излучение

PACS numbers: 42.25.Fx, 42.25.Kb, **61.72.**–y, 61.72.Ff, 61.72.Lk DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2018.06.038371>

Содержание

1. Введение (643).
 2. Микропоры в монокристаллах SiC и их свойства (645).
 3. Теория метода фазово-контрастного изображения на просвет в синхротронном излучении (647).
 4. Экспериментальные исследования микротрубок в монокристаллах карбида кремния методом фазового контраста (650).
 5. Компьютерная симуляция изображений и решение обратной задачи (655).
 6. Заключение (656).
- Список литературы (657).

1. Введение

Монокристаллические материалы редко встречаются в природе, и для их создания, как правило, требуются специальные условия. Однако они находят широкое применение в различных областях техники благодаря своим уникальным свойствам. Достаточно вспомнить о том, что монокристаллический кремний (Si) с очень низкой концентрацией дефектов кристаллической решётки является основой современной электроники. В электронных приборах нового поколения используются другие монокристаллы, как полупроводники, так и

изоляторы. Примером нового материала, освоенного на промышленном уровне, является карбид кремния (SiC) — широкозонный полупроводник, ценными качествами которого являются большие пробивные напряжения (на порядок выше, чем для кремния) и хорошая теплопроводность при высокой термической стабильности, химической резистивности и радиационной стойкости. Несмотря на то что качество монокристаллов SiC ещё не отвечает самым высоким стандартам, интерес к ним обусловлен потребностью в подложках для приборных структур силовой быстродействующей электроники, сверхвысокочастотной электроники и оптоэлектроники [1–3].

Определённую проблему, которая мешает получению высококачественных подложек, представляют микропоры различной природы. Среди требований, предъявляемых к подложкам SiC, следует отметить низкую плотность микропор: $< 5 \text{ см}^{-2}$ [2]. Выполнение этого требования, наряду с необходимостью иметь подложки большой площади и структурной однородности, приводит к высокой стоимости подложек. Поры возникают в процессе роста монокристаллов SiC при определённых физико-химических условиях. Зная природу образования микропор, можно определить условия роста, при которых порообразование удаётся контролировать. Поэтому исследование микропор является актуальной научной и практической задачей.

Кристаллы SiC, выращенные на затравках методом сублимации, содержат микропоры трубчатой формы, называемые микротрубками (МТ). Природа этих дефектов была объяснена исходя из теории Франка, согласно которой полые трубки радиусом r могут образовываться на винтовых супердислокациях с большими векторами Бюргерса b , устраняя формирование областей высоких напряжений вокруг дислокационных линий; при этом

Т.С. Аргунова⁽¹⁾, В.Г. Кон⁽²⁾

⁽¹⁾ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, ул. Политехническая 26, 194021 Санкт-Петербург, Российская Федерация

⁽²⁾ Национальный исследовательский центр "Курчатовский институт", пл. Академика Курчатова 1, 123182 Москва, Российская Федерация
E-mail: ⁽¹⁾ argunova2002@mail.ru, ⁽²⁾ kohnvict@yandex.ru

Статья поступила 16 апреля 2018 г., после доработки 15 июня 2018 г.

$r \sim b^2$ [4, 5]. Основной вклад в развитие технологий получения монокристаллов с низкой плотностью МТ внесли те методы, при помощи которых исследователи могли не только наблюдать МТ, но и устанавливать их количественные характеристики. Радиус r можно определить при помощи метода сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) [6] или атомно-силовой микроскопии (АСМ) [7], а вектор Бюргера — методами рентгеновской дифракционной топографии [6], АСМ [8], просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) [9] или поляризационно-оптической микроскопии [10].

В результате определения характеристик микротрубок были разработаны различные модели их формирования [7, 9, 11–13], которые способствовали прогрессу в производстве качественных кристаллов. Снижение плотности распределения микротрубок было достигнуто путём подавления центров их зарождения: включений второй фазы и дефектных границ, а также структурных неоднородностей на начальной стадии роста. В течение первого десятилетия XXI в. плотность микротрубок в промышленных монокристаллах диаметром ≥ 150 мкм была уменьшена от $1–5 \text{ см}^{-2}$ [14] до $< 0,1 \text{ см}^{-2}$ [15]. В настоящее время монокристаллы SiC от крупнейших мировых производителей достигли того структурного совершенства, которое требуется для изготовления силовых приборов.

В данном обзоре представлен относительно новый метод, с помощью которого можно получить информацию о размерах, форме и концентрации микропор без разрушения образца. Этот метод не относится к рутинным инструментам диагностики, но имеет большой потенциал для исследования почти совершенных монокристаллов. Речь идёт о фазово-контрастном изображении на просвет в синхротронном излучении (СИ). Актуальность разработки нового метода обусловлена тем, что возможности каждого из вышеперечисленных методов имеют различные ограничения.

Например, поверхностно-чувствительные методы СЭМ и АСМ выявляют ямки и спирали роста в местах выхода МТ на ростовую поверхность. Однако форма ямки не отражает форму МТ на всём пути её распространения в кристалле. Сравнительно низкое разрешение метода оптической микроскопии не позволяет увидеть детали морфологии мелких МТ. Метод ПЭМ, напротив, имеет настолько высокое разрешение, что при исследовании образцов с малой плотностью МТ последние могут не попасть в поле зрения микроскопа. Рентгеновская топография не показывает морфологию МТ и выявляет только такие дефекты, которые связаны с искажениями решётки.

Относительно полную картину с изображением микропор в объёме монокристалла можно получить методом рентгеновского фазово-контрастного изображения на просвет. Микроскопическое изменение толщины кристалла по ходу лучей, вызванное появлением микропоры, приводит к заметному сдвигу фазы когерентного рентгеновского излучения, прошедшего сквозь образец, что вызывает искривление поверхности постоянной фазы. На некотором расстоянии от образца кривизна фазового фронта обуславливает неоднородное распределение интенсивности излучения, которое можно измерить с помощью детектора.

Очевидно, что пространственное изменение интенсивности такого типа не приводит к изменению интен-

сивности, так как в пустом пространстве отсутствуют как источники, так и поглотители излучения. Хотя эффект записи фазы волнового поля излучения при её преобразовании в интенсивность давно известен и широко применяется в голографии, например, в схеме Габора [16]; в рентгеновской оптике такие методы долгое время широко не использовались по причине слабой когерентности рентгеновских источников и низкого разрешения рентгеновских детекторов. Ведь рентгеновские голографические спеклы имеют очень малые размеры.

Ситуация резко изменилась в середине 1990-х годов. Были предложены и стали интенсивно развиваться сразу четыре метода регистрации фазово-контрастных изображений: метод на основе трёхкристального интерферометра Бонзе–Харта, метод на основе регистрации угловых отклонений с помощью дифракции в кристаллах, метод с использованием периодических решёток и, наконец, метод фазово-контрастных изображений на просвет, который аналогичен голографии Габора. В настоящее время опубликовано несколько обзоров, в которых описаны все указанные методы с указанием литературы (см., например, [17–21]).

Метод фазово-контрастных изображений на просвет отличается простотой схемы эксперимента. Кроме источника, образца и детектора больше ничего не требуется. Его особенность состоит в том, что контраст можно наблюдать только в условиях высокой пространственной и временной когерентности, которую обеспечивают современные источники синхротронного излучения третьего поколения [22,23], имеющие относительно малый угловой размер и, как следствие, достаточно высокую пространственную когерентность, хотя и уступающую оптическим лазерам. Что касается временной когерентности, то её обеспечивают монохроматоры на основе дифракции в кристаллах.

Кроме того, метод на просвет нуждается в современном оборудовании, например, в детекторах с высоким пространственным разрешением, способных фиксировать малое число фотонов, а также в прецизионных гониометрах. С другой стороны, в отличие от других схем формирования рентгеновского фазового контраста, метод на просвет не нуждается в оптических элементах типа решёток, фокусирующих элементов или кристаллов в положении брэгговского отражения.

Данный обзор построен следующим образом. В разделе 2 описаны основные типы микропор в монокристаллах SiC и их свойства. В третьем разделе представлена история развития теории метода фазово-контрастных изображений на просвет и описаны методы и проблемы решения обратной задачи вычисления профиля изменения фазы из измеряемого профиля интенсивности, а также некоторые результаты применения метода в томографии. В четвёртом разделе изложены результаты экспериментального исследования микротрубок в кристаллах карбида кремния в условиях низкой временной когерентности. В разделе 5 описан метод решения обратной задачи получения размеров сечения микротрубок из экспериментальных изображений. Там же обсуждаются экспериментальные результаты, которые не удаётся объяснить в рамках существующей теории. В заключении рассмотрен пример применения метода к другим объектам и обрисованы перспективы его развития.

2. Микропоры в монокристаллах SiC и их свойства

Для монокристаллов различных соединений характерны поры, которые возникают одновременно с формированием кристаллической решётки. Поры в виде трубок с сечениями микро- и нанометровых размеров были обнаружены в карбиде кремния, ферритах-гранатах, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ и нитриде галлия [24–27]. Ярким примером образования первичных пор является кристаллизация карбида кремния, который при малых пересыщениях растёт путём формирования спиралей, порождённых винтовыми дислокациями [5, 28–30]. Высота ступеньки спирали равна целому числу размеров элементарной ячейки данного политипа SiC в направлении оси дислокации. На поверхности синтезированных кристаллов в самом центре больших спиралей находится пустота, которая, согласно теории Франка [4], образуется в наиболее деформированной области вокруг дислокации с большим вектором Бюргерса $b > 1$ нм. Радиус такой микротрубки r прямо пропорционален квадрату вектора Бюргерса b :

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

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

Необходимость получения материала высокого структурного совершенства для электронной техники привела к развитию методов выращивания искусственных монокристаллов SiC. В начале 1980-х годов появился метод выращивания кристалла на затравке путём химического осаждения паров — метод сублимации [31], который позволил существенно увеличить размеры кристалла. Было налажено промышленное производство слитков большого диаметра. В начале производства коммерческих кристаллов плотность распределения трубчатых микропор в них была высокой: $\geq 10^5 \text{ см}^{-2}$ [32]. Так как поры представляют большую угрозу для работы приборов на основе SiC [33], были предприняты значительные усилия для создания условий роста, препятствующих их массовому зарождению. Изучение свойств МТ в SiC стало актуальной проблемой, вызвавшей большой поток публикаций.

Справедливость формулы Франка (1) неоднократно проверялась разными методами и даже сразу несколькими методами, как, например, в работе [30], авторы которой исследовали кристалл 6H-SiC фазово-контрастной оптической микроскопией, оптической интерферометрией и рентгеновской топографией. Было получено относительно плохое согласие между высотой ступеньки спирали и величиной вектора Бюргерса винтовой дислокации, а также между диаметром пустоты на поверхности и в объёме кристалла. По мнению авторов, расхождение было вызвано, в частности, большой угловой расходимостью коллимированного пучка от рентгеновской трубки.

В течение ряда лет в научной литературе продолжал обсуждаться вопрос о том, являются ли МТ винтовыми дислокациями с полыми ядрами. Утвердительный ответ был получен в середине 1990-х годов в результате проведения рентгенотопографических экспериментов в белом СИ [6]. Величина вектора Бюргерса, рассчитанная по серии топограмм, и радиус отверстия в центре спирали,

измеренный с помощью метода СЭМ, хорошо удовлетворяли соотношению $r \sim b^2$ при среднем значении отношения γ/G из интервала $(1,1-1,6) \times 10^{-3}$. При этом диаметры МТ изменялись от 0,1 мкм до нескольких микрометров, и типичные величины векторов Бюргерса b супердислокаций были равны $2-7c$, где c — параметр элементарной ячейки политипа SiC. В результате дальнейших исследований тех же авторов с применением оригинального метода моделирования топографических изображений супердислокаций были получены новые подтверждения теории Франка, а также разработана модель зарождения МТ на включениях второй фазы [12].

Отметим, однако, что примерно в то же время МТ были описаны как супердислокации смешанного типа, зародившиеся на кластерах дефектов упаковки [8, 9, 11]. В рамках разных моделей (см. также [7, 10, 13]) неизменно вставал вопрос о том, почему элементарные дислокации ($b = 1c$) одного знака притягиваются друг к другу, образуя супердислокации. Сложилось общее мнение, что последние образуются путём реакций между дислокациями в местах их плотных скоплений: на границах разориентированных доменов, включений других политипов и т.д.

На рисунке 1 показаны изображения трубчатых микропор в кристаллах SiC, полученные разными методами. На рентгеновской топограмме (рис. 1а), измеренной в белом СИ, микротрубки, оси которых расположены перпендикулярно поверхности с ориентацией (0001), видны благодаря их дислокационной природе [34]. СЭМ-изображение аналогично ориентированных МТ получено от поверхности, подвергнутой химическому травлению в растворе гидроксида калия (KOH) до появления ямок (рис. 1б). Спиральный рост кристалла демонстрирует СЭМ-изображение его поверхности (рис. 1в). На оптической микрофотографии образца 4H-SiC МТ начи-

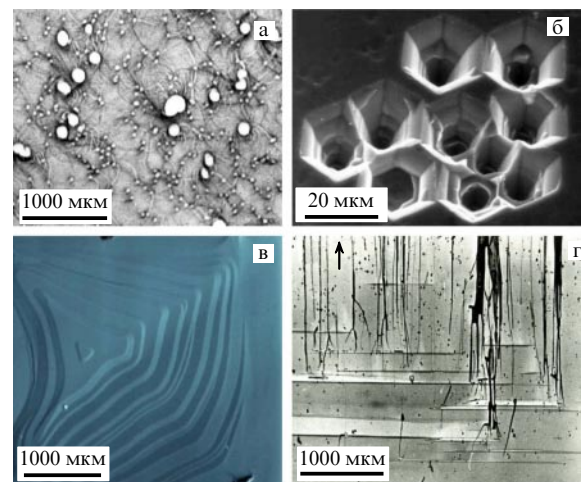


Рис. 1. Изображения микротрубок в монокристаллах SiC. (а) Рентгеновская топограмма на отражение от пластины 6H-SiC (0001) в белом СИ. Круглые изображения винтовых супердислокаций получены при следующих параметрах: отражение 00024, основная длина волны $\lambda = 1,25 \text{ \AA}$, расстояние до плёнки 20 см. Линии слабого контраста, соединяющие супердислокации, представляют собой дислокации базисной плоскости [34]. (б) Микротрубки на поверхности образца 6H-SiC (0001) [42]. Метод СЭМ. (в) Ростова поверхность кристалла, полученного методом сублимации. Метод СЭМ. (г) Оптическая микрофотография пластины 4H-SiC ($1\bar{1}00$) [137]. Направление роста указано стрелкой.

наются вблизи горизонтальных границ и распространяются вдоль направления роста $\langle 0001 \rangle$, обозначенного на рисунке стрелкой, обращённой вверх (рис. 1г). Границы разделяют слоистые включения других политипов, в данном случае 6H и 15R. Оба этих политипа имеют гексагональные элементарные ячейки с одинаковыми параметрами a и b ; однако высоты ячеек различаются между собой [5], составляя соответственно $c = 15,11 \text{ \AA}$ и $c = 37,70 \text{ \AA}$. Основной политип 4H-SiC имеет параметр $c = 10,05 \text{ \AA}$.

Подобные скопления МТ по границам политипов представляют собой весьма типичное явление, возникающее в результате их реакций с такими границами [35]. В процессе роста кристалла дислокационные трубки, накапливаясь, объединяются в макропоры [36]. Зародившиеся таким образом поры могут продолжать свой рост, поглощая новые МТ [37].

В отличие от пор, трубки вокруг винтовых дислокаций в кристаллах SiC проявляют необычные свойства, присущие только таким объектам: они вступают во взаимодействие друг с другом. Экспериментально были обнаружены следующие конфигурации МТ: дислокационные пучки; слившиеся МТ, когда две трубки соединяются в одну; спирали, образованные двумя и более МТ; полупетли, которыми заканчиваются двойные спирали [38, 39]. Такие взаимодействия могут оказывать заметное влияние на структурное совершенство кристалла по мере его роста, как понижая, так и повышая плотность распределения МТ. С целью обнаружения механизмов уменьшения плотности этих дефектов было выполнено компьютерное моделирование поведения ансамбля дислокационных трубок в процессе роста [40, 41]. Наблюдались реакции слияния трубок с дислокациями разных знаков, которые приводили либо к уменьшению суммарного вектора Бюргерса, а следовательно, и диаметра МТ, либо к аннигиляции дислокаций и зарастанию МТ. Трубки большого диаметра притягивали и поглощали трубки малого диаметра. Такие реакции, происходящие в местах скоплений МТ, могут способствовать понижению их плотности [42, 43].

По мере совершенствования методов выращивания количество структурных дефектов в монокристаллах SiC уменьшалось, а диаметр слитков увеличился до величины $> 150 \text{ мм}$ [14, 15]. В 2007 г. американская компания Cree Inc., мировой лидер в области производства карбида кремния, объявила о выдающемся результате: были получены подложки SiC n -типа диаметром 100 мм, не содержавшие ни одной МТ. Этому событию способствовали обширные исследования, проведённые в лабораториях разных стран.

Сопоставление результатов опубликованных исследований позволяет выявить отдельные противоречия в объяснении свойств микропор в SiC. В частности, следует отметить большой разброс значений поверхностной энергии γ в работах тех авторов, которые проверяли справедливость формулы Франка. Можно предположить, что формирование МТ в значительной мере определяется кинетикой процессов зарождения и взаимодействия дефектов, а не термодинамикой Франка. В одной из ранних работ было отмечено, что дислокации способны превратиться в МТ под влиянием изменения условий роста [44], в частности, температуры и давления, которые могут спровоцировать миграцию точечных дефектов по ядрам дислокаций.

Кроме того, ни один из методов, применявшихся для изучения МТ, не давал возможности наблюдать на микроуровне за морфологией этих дефектов. Такие приборы, как оптический микроскоп с дифференциальным контрастом Номарского, сканирующий электронный или атомно-силовой микроскоп хорошо выявляют спирали роста и ямки на ростовой поверхности. Просвечивающий электронный микроскоп регистрирует дифракционное изображение дислокации, линия которой проходит внутри трубки. Методы рентгеновской топографии хорошо чувствуют поля напряжений, но не отличаются высоким разрешением.

Отметим, что исследователи, применившие для изучения МТ последние два метода, разошлись во мнениях о типе дислокаций внутри трубок [6, 9]. Тем не менее они были единодушны в том, что МТ имеет форму цилиндра, радиус которого постоянен вдоль её оси. Так ли это на самом деле? Только фазово-контрастные изображения могут ответить на этот вопрос, поскольку они содержат информацию как о форме МТ, так и о её микроскопических изменениях. Метод изображения на просвет в СИ позволяет проследить изменение морфологии на всём пути распространения МТ в кристалле. Основываясь на данных, полученных этим методом, которые приведены далее, был разработан альтернативный механизм превращения дислокаций в микротрубку.

Рассмотренные особенности микро- и макропор не исчерпывают всего разнообразия свойств пор в монокристаллах SiC. Некоторые из них ещё не нашли своего объяснения. Метод фазово-контрастного изображения на просвет может быть весьма полезен для их изучения при условии развития подходов к моделированию изображений. Если размеры пор не превышают нескольких микрометров и их изображения были измерены в дальнем поле, т.е. далеко от образца, с помощью излучения с широким частотным спектром, компьютерное моделирование является единственным способом решения обратной задачи.

Микротрубка представляет собой квазилинейный объект, в котором электронная плотность быстро меняется поперёк оси и медленно — вдоль неё. Поэтому распределение интенсивности поперёк оси в каждом выбранном сечении можно фитировать, пренебрегая зависимостью вдоль оси. Этот одномерный подход даёт возможность получить информацию о размерах сечения вдоль и поперёк пучка при том условии, что резкие изменения формы вдоль оси трубки отсутствуют в пределах диаметра первой зоны Френеля. Однако количественное описание микропор квазисферической, слегка вытянутой, ограниченной или иной формы требует привлечения двумерных расчётов.

Рассмотрим в качестве примера карбид кремния, полученный по модифицированной технологии, для которого вышеописанные проблемы не актуальны. В ряде работ (см., например, [45]) были использованы затравки SiC, ориентированные по плоскостям $(11\bar{2}0)$ и $(1\bar{1}00)$. Модифицированная технология была нацелена на полное предотвращение зарождения МТ, характерного исключительно для роста SiC на затравках, ориентированных по базисной плоскости (0001) . На основе таких исследований Накамура разработал технологию выращивания кристаллов высокого структурного качества [46]. Затем была выполнена работа с повторением этой технологии, в которой, однако, был использован новый

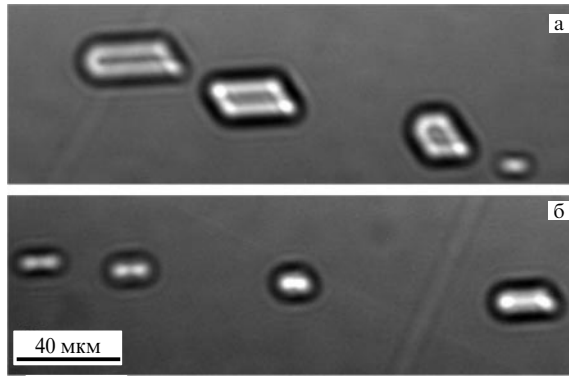


Рис. 2. Фазово-контрастные изображения микропор в дальнем поле [156]. Кристалл 6H-SiC выращен в направлении $\langle 1\bar{1}00 \rangle$. Расстояние до детектора 40 см. Энергия фотонов $E = 16$ кэВ и $\Delta E/E = 0,02$. Величина поперечной длины когерентности равна 21 мкм. (а) Огранённые поры. (б) Микропоры со сглаженными краями.

элемент, нацеленный на снижение плотности дислокаций, прорастающих из затравки [47]. На ростовой поверхности затравки с ориентацией $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ был механическим способом изготовлен искусственный рельеф в виде канавок глубиной и шириной 50–80 мкм, разделявших площадки размером 500×500 мкм.

В образцах с ориентацией поверхности $\langle 0001 \rangle$, приготовленных из такого слитка, не было МТ, параллельных оси $\langle 0001 \rangle$. Тем не менее такие кристаллы тоже имели микропоры. Одни из них были в форме трубок переменного диаметра, оси которых ориентированы перпендикулярно направлению $\langle 0001 \rangle$. Края других пор имели фасетки. Форма самых мелких пор была сглаженной до овалов или капсул. На рисунке 2 показаны мелкие поры в образце SiC, которые появились в процессе роста кристалла в направлении $\langle 1\bar{1}00 \rangle$. Они были выявлены методом изображения на просвет в СИ. Такие поры вполне могут быть сформированы диффузией вакансий по дефектам структуры типа границ субзёрен или полос скольжения дислокаций, присутствовавших в образце и обнаруженных методом рентгеновской топографии.

В заключение этого раздела приведём ещё два примера пор в нитриде алюминия (AlN) и лейкосапфире (Al_2O_3). Объёмные монокристаллы AlN выращивают на подложках карбида кремния методом сублимации. Известно, что при остывании кристаллов малой толщины ($< 2-3$ мм), полученных на достаточно толстых подложках SiC, в их объёме образуются трещины по причине большого различия коэффициентов термического расширения AlN и SiC. В результате экспериментальных исследований было установлено, что испарение подложки SiC в процессе роста AlN может полностью предотвратить растрескивание [48–50]. Кристаллы AlN с испарённой подложкой практически не имеют трещин, в то же время они содержат микроскопические поры [51, 52]. Кинетика испарения кристаллического карбида кремния — это сложный процесс, который зависит не только от условий роста, но и от геометрических размеров кристалла, его структурного совершенства и кристаллографической ориентации. Некоторые особенности испарения затрудняют полное удаление подложки в процессе роста AlN и способствуют образованию в нём пор.

На рисунке 3а показано фазово-контрастное изображение микропор в слое AlN толщиной 0,75 мм. Поры

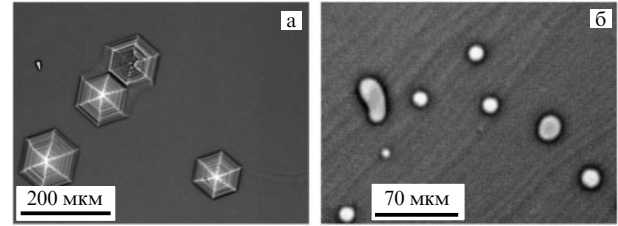


Рис. 3. Микропоры в монокристаллах AlN (а) и Al_2O_3 (б) [39, 49]. (а) Розовый пучок СИ, ближнее поле: $r_d = 15$ см. (б) Монохроматическое излучение с энергией $E = 25$ кэВ и спектральным разрешением $\Delta E/E = 0,01\%$. Дальнее поле: $r_d = 25$ см.

имеют гексагональную форму и сложную структуру, сформированную из границ, террас, вершин и фасеток. Однако главная особенность, облегчающая их изучение, состоит в том, что они имеют довольно крупный размер, достигающий десятков микрометров. Это свойство практически исключает необходимость решения обратной задачи: размеры пор можно измерять прямо на изображении, полученном в ближнем поле.

На рисунке 3б, наоборот, показаны микропоры гораздо более мелких размеров. Они представляют собой газовые включения в кристаллах профилированного сапфира, выращенных по методу Степанова [53, 54]. Газовые пузыри ухудшают прочность и оказывают отрицательное влияние на оптические и электрические свойства сапфира. Зная их природу, можно установить условия роста, при которых образование микропузырей будет находиться под контролем. Метод фазово-контрастного изображения на просвет весьма перспективен для определения размеров, формы и концентрации газовых включений в объёме кристаллов Al_2O_3 . Качество изображений микропузырей улучшается в условиях дальнего поля, поэтому к ним необходимо применять метод двумерного моделирования.

3. Теория метода фазово-контрастного изображения на просвет в синхротронном излучении

Метод фазово-контрастного изображения прозрачных объектов на просвет в рентгеновском излучении практически полностью соответствует идее голографии, предложенной Габором ещё в 1948 г. [16]. Идею метода проще всего объяснить на изображении оптического волокна, состоящего из вольфрамовой проволоки диаметром 15 мкм, на которую нанесён аморфный бор таким образом, что полный диаметр волокна равен 100 мкм. Такой объект часто используется для определения пространственной когерентности рентгеновского излучения [55–57].

Схема и результаты эксперимента показаны на рис. 4. В реальной схеме есть ещё монохроматор, который выделяет узкий пик при заданной частоте из широкого спектра СИ, но никак не влияет на ход лучей, поэтому он не показан. Источник СИ имеет конечный размер S в направлении оси x , перпендикулярном оптической оси (ось z). На большом расстоянии r_s (30–100 м) от источника находится объект — волокно, которое очень слабо поглощает рентгеновское излучение. И на конечном расстоянии r_d (0,1–5 м) от объекта расположен пози-

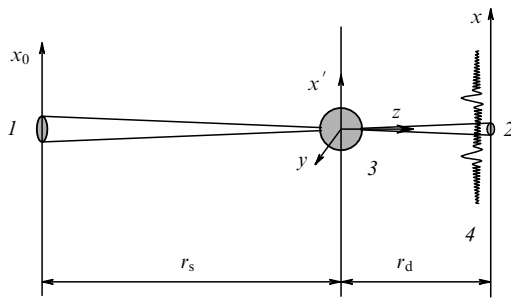


Рис. 4. Упрощённая экспериментальная схема и результаты в методе фазово-контрастного изображения на просвет в синхротронном излучении (СИ) [56]. 1 — источник СИ, показан его поперечный размер, 2 — поперечный размер проекции источника на детекторе, 3 — образец (волокно), 4 — распределение интенсивности на детекторе.

ционно-чувствительный детектор (ПЗС-матрица), измеряющий интенсивность излучения.

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

Осцилляции интенсивности имеют простую форму, но с переменными амплитудой и периодом, причём как амплитуда, так и период медленно уменьшаются при увеличении расстояния от края тени. Но реальная картина в существенной степени будет зависеть от поперечного размера источника. Истинными источниками СИ являются точечные электроны, которые спонтанно высвечивают пути конечной длины. Хорошей аппроксимацией такого источника служит модель, в которой каждая точка поперечного размера источника светит независимо (некогерентно), а интенсивность свечения изменяется по гауссову закону, т.е. можно говорить о полуширине источника в поперечном направлении.

Каждая точка на источнике будет приводить к одинаковой картине интерференции (голограмме), но смещённой в поперечном направлении. Такой результат легко получить, просто поворачивая оптическую ось на некоторый угол. Соответственно реальная картина получается из картины интерференции для точечного источника в результате свёртки с кривой проекции интенсивности источника на детекторе. Это тоже гауссова функция, но с полушириной $s = Sr_d/r_s$. При относительно небольшом размере источника S пропадают лишь далёкие осцилляции с малым периодом. Однако с ростом размера источника могут исчезнуть все осцилляции и изображение волокна пропадёт, если не учитывать очень слабое изменение интенсивности из-за поглощения.

Важно отметить, что интерференционный характер изображения увеличивает интенсивность в максимуме в четыре раза на ближних к краю тени максимумах, а

поглощение может только уменьшить интенсивность с единицы до нуля, но для прозрачных объектов изменение может составлять доли процентов. Важно также, что боковые сильные осцилляции создают практически все объекты конечных размеров, не только волокна. И эти осцилляции не пропадают даже при довольно большом размере источника [58]. Вместе с тем ясно, что важен даже не столько сам размер источника, сколько его угловой размер на объекте $\alpha = S/r_s$. С этим параметром связан другой параметр, который называется длиной поперечной когерентности $L_{ic} = \lambda/2\alpha$, где λ — длина волны монохроматического излучения. Он равен максимальному расстоянию между точками в поперечном сечении объекта, которые ещё могут интерферировать.

Данный метод был впервые предложен и экспериментально продемонстрирован в работах [22, 23]. Обе работы были выполнены на источнике СИ третьего поколения в Гренобле, Франция (ESRF), вскоре после того, как он начал функционировать в первой половине 1990-х годов. В то время это был единственный такой источник в мире. К моменту написания данного обзора сервис Google Scholar показывал на статью [22] 1400 статей, которые её цитируют. Очевидно, почти все статьи посвящены применению метода фазового контраста в материаловедении, биологии, медицине и других областях.

Если проследить цитирование по годам, то можно заметить, что оно всё время возрастает, причём во втором десятилетии после публикации было намного больше ссылок, чем в первом десятилетии. Это легко объясняется увеличением числа источников СИ третьего поколения в мире за это время и практической важностью метода, особенно в биологии при неразрушающем исследовании мягких тканей живых организмов. СИ просвечивает объект насквозь и позволяет фиксировать внутреннее строение объекта через полный сдвиг фазы вдоль пути лучей в объекте. Используя ставший уже стандартным метод томографии [59], при вращении объекта вокруг вертикальной оси можно получить двумерное распределение электронной плотности в каждом сечении образца по высоте и даже трёхмерное по совокупности всех сечений при изменении высоты.

В одном обзоре невозможно описать все работы, поэтому здесь отмечены только такие статьи, в которых экспериментальные исследования сопровождаются компьютерным моделированием фазово-контрастных изображений, обсуждается развитие прямых методов решения обратной задачи вычисления профиля сдвига фазы в объекте из профиля регистрируемой интенсивности на детекторе и используются методы томографии. Среди большого числа работ первого типа отметим следующие: [22, 23, 60–69]. Работы второго типа [70–101] стали появляться одновременно с экспериментальными исследованиями, т.е. с 1995 г., и исследования продолжают до настоящего времени. Такая же ситуация и с использованием томографии. Первая статья по томографии [102] появилась в 1996 г., и в ней обратная задача ещё не решалась, а использовался эффект детектирования краёв областей объекта с разной электронной плотностью, описанный выше. В последующих работах [103–118] томография делалась из профиля сдвига фазы, а также разрабатывались теоретические методы такой томографии.

Более простые формулы получаются в одномерном варианте теории, когда изменение электронной плотно-

сти в объекте происходит только в направлении оси x . Переход к двумерному варианту в формулах выполняется добавлением ещё одной переменной y . Рассмотрим одномерный вариант. В теории рентгеновского фазового контраста с высокой точностью можно использовать приближение параксиальной оптики по той причине, что продольные расстояния (вдоль оси z) измеряются в сантиметрах, в то время как поперечные расстояния (вдоль оси x) измеряются в микрометрах, а длина волны излучения — в ангстремах (0,1 нм). Интересно, что при использовании таких единиц формула для радиуса первой зоны Френеля $r_1 = (\lambda z)^{1/2}$ не содержит дополнительных множителей.

Далее представлены основные положения теории, которые используются в большом числе указанных выше работ, поэтому ссылки опущены. Данный подход является абсолютно общим и работает не только в ближнем поле, где справедлива рассмотренная геометрическая оптика, но и в дальнем поле, т.е. на большом расстоянии от объекта, где геометрическая оптика неприменима.

Решение уравнения Максвелла для электрического поля излучения ищется в виде

$$E(x, z, t) = \exp(ikz - i\omega t) A(x, z), \quad (2)$$

где $k = \omega/c = 2\pi/\lambda$ — волновое число, ω — частота излучения, c — скорость света, $A(x, z)$ — медленно меняющаяся по сравнению с экспонентой функция, которая зависит от ω как от внешнего параметра. В параксиальном приближении уравнение для этой функции можно записать в виде

$$\frac{\partial A}{\partial z} = -ik\eta\rho(x, z)A + \frac{i}{2k} \frac{\partial^2 A}{\partial x^2}. \quad (3)$$

Здесь $\eta = \delta - i\beta = 1 - n = -\chi/2$, где n — комплексный коэффициент преломления, учитывающий также и поглощение излучения в веществе, $\chi = \varepsilon - 1$ равна восприимчивости среды, ε — диэлектрическая проницаемость.

Формула (3) написана в предположении, что излучение проходит через среду, имеющую одинаковую электронную плотность всюду, где есть вещество, и там функция $\rho(x, z) = 1$, но она равна нулю там, где вещества нет. В рассматриваемом нами случае образцы имеют малую толщину по сравнению с очень большими расстояниями до и после него. На малых расстояниях можно воспользоваться упрощённым вариантом геометрической оптики и пренебречь искривлением траектории лучей внутри образца. Это означает приближение, в котором можно обнулить второй член в правой части уравнения (3), после чего уравнение легко решается и решение имеет вид

$$A(x, z_1) = A(x, z_0) T(x), \quad T(x) = \exp[-ik\eta t(x)], \quad (4)$$

где

$$t(x) = \int_{z_0}^{z_1} dz \rho(x, z). \quad (5)$$

Функция $T(x)$ называется трансмиссионной функцией образца, а функция $t(x)$ представляет собой переменную толщину образца на пути луча, направленного вдоль оптической оси и отклонённого на координату x . Если образец имеет переменную форму или внутри него со-

держатся пустоты, то эта функция становится переменной. Вообще говоря, трансмиссионная функция изменяет как амплитуду, так и фазу волнового поля. При этом толщина образца в явном виде в задачу не входит. Но её надо учитывать при расчёте расстояний.

На больших расстояниях в пустом пространстве до и после образца в уравнении (3) отсутствует первый член в правой части. В этом случае решение можно записать в виде свёртки, а именно

$$A(x, z_1) = \int dx' P(x - x', z_1 - z_0) A(x', z_0), \quad (6)$$

где на входе используется известная волновая функция, результат вычисляется в бесконечных пределах, а вторая функция представляет собой пропагатор Френеля как поперечную часть сферической волны в параксиальном приближении:

$$P(x, z) = \frac{1}{(i\lambda z)^{1/2}} \exp\left(i\pi \frac{x^2}{\lambda z}\right). \quad (7)$$

Формула (6) является частным случаем принципа Гюйгенса–Френеля.

Для простой схемы эксперимента, показанной на рис. 4, и для случая точечного источника, смещённого от оптической оси на расстояние x_0 , формулу для амплитуды волнового поля на детекторе можно сразу записать в виде

$$A(x, x_0) = \int dx' P(x - x', r_d) T(x') P(x' - x_0, r_s). \quad (8)$$

Детектор измеряет интенсивность $|A(x)|^2$, а нас интересует функция $t(x)$, определённая в (5), которую легко найти из фазы трансмиссионной функции $T(x)$. Формула (8) и её двумерный аналог используются для моделирования экспериментальных фазово-контрастных изображений на компьютере. При этом результирующую интенсивность необходимо свернуть с функцией интенсивности источника и просуммировать по возможному спектру излучения.

Прямые методы решения обратной задачи позволяют в ряде случаев определить фазу трансмиссионной функции непосредственно из экспериментальных данных в результате расчётов. Прежде чем сделать обзор таких методов, покажем, что формулу (8) можно преобразовать к другому виду, если выделить волновую функцию поля на полном расстоянии и рассматривать отношение поля в случае с образцом к полю в случае без образца:

$$\frac{A(x, x_0)}{P(x - x_0, r_t)} = a\left(\frac{r_s}{r_t} \left(x + x_0 \frac{r_d}{r_s}\right)\right), \quad (9)$$

где

$$a(x) = \int dx' P(x - x', r') T(x'). \quad (10)$$

Здесь $r' = r_d r_s / r_t$, $r_t = r_s + r_d$. Формулы (9), (10) в явном виде показывают свойства симметрии получаемых в данном методе изображений.

Так, смещение точечного источника на расстояние x_0 приводит к смещению всей картины как целого на расстояние $-x_0 r_d / r_s$. Это свойство позволяет относительно просто учесть в расчётах размеры реального источника. С другой стороны, видно, что независимо от расстояния источник – образец картина получается аналогичной слу-

чаю падения плоской волны ($r_s = \infty$), но в расходящейся волне картина эффективно получается более широкой и соответствует меньшему расстоянию по сравнению с параллельным пучком.

Если образец имеет конечные размеры, то за его пределами функция $T(x)$ равна единице. По этой причине в расчётах вместо (10) удобно использовать другую формулу:

$$a(x) = 1 + \int dx' P(x - x', r') [T(x') - 1], \quad (11)$$

в которой интеграл уже имеет конечные пределы и в явном виде описывает фазовый контраст относительно единичного фона. Здесь использован тот факт, что интеграл от пропагатора Френеля равен единице.

Хотя в разных публикациях прямые методы решения обратной задачи выводятся разными способами, они все могут быть выведены из интегралов (10) и (11). Как уже отмечено, рассматриваемый метод аналогичен методу голографии по Габору. И существует большое количество работ по реконструкции габоровских голограмм, в том числе и в оптике видимого света. Габоровские голограммы наиболее хорошо восстанавливаются для образцов малого поперечного размера методом обратного преобразования для квадрата модуля (11) [74]. Обозначим свёртку символом $*$ и введём обозначения $H(x) = |a(x)|^2$, $o(x) = T(x) - 1$. Тогда

$$\begin{aligned} R(x) &= P^*(x - x', r') * [H(x') - 1] = \\ &= o(x) + P^*(x - x', 2r') * o^*(x') + \\ &+ P^*(x - x', r') * |P^*(x' - x'', r') * o(x'')|^2. \end{aligned} \quad (12)$$

Отсюда видно, что преобразование такого типа можно выразить через сумму трёх членов. Первый член является изображением объекта в чистом виде. Это трансмиссионная функция, из которой можно получить профиль фазы. Второй член называется изображением-близнецом. Оно несколько искажает исходное изображение, но не полностью, потому что имеет большие размеры, так как соответствует двойному расстоянию. А третий член обычно сильно размазан и представляет собой слабо неоднородный фон. Если объект хорошо локализован, то его можно разглядеть.

Однако для прозрачных объектов такой метод не всегда является эффективным. Другим способом решения обратной задачи является итерационный метод. Для преобразования (10) можно получить обратное преобразование

$$T(x) = \int dx' P^*(x - x', r') a(x'). \quad (13)$$

В эксперименте измеряются модули функций $T(x)$ и $a(x)$. Задача состоит в том, чтобы вычислить их фазы. Можно стартовать с любой функции, приписывая ей какую-нибудь фазу, даже нулевую. После вычисления в одну сторону исправляется модуль на известный, но сохраняется вычисленная фаза. То же самое повторяется при вычислениях в другую сторону и так далее.

В результате численных экспериментов было показано, что в ряде случаев такой процесс сходится и даёт правильный ответ. На большом расстоянии r' интегральное преобразование с пропагатором Френеля эквивалентно преобразованию Фурье. Для такого преобразования итерационный метод впервые был предложен в

работе [119]. Было показано, что для объектов с двумерным поперечным сечением малого размера такой метод всегда даёт сходимость к правильному решению. Он лежит в основе метода птайкографии [120].

Отметим также другие подходы. Например, если фаза трансмиссионной функции мала, то экспоненту можно разложить в степенной ряд и ограничиться первым членом разложения. В этом случае профиль фазы можно приближённо вычислить непосредственно из профиля интенсивности [91]. В большом числе работ используется так называемое приближение транспорта интенсивности, которое хорошо работает на малых расстояниях от образца, т.е. в ближнем поле. Если фаза трансмиссионной функции изменяется медленно, то можно получить уравнение, связывающее профиль интенсивности со второй производной от фазы.

Другим способом это приближение можно получить, вычисляя интеграл (10) методом стационарной фазы. Интересно, что для этого метода не требуется высокая пространственная когерентность излучения, и его можно применять даже для сильно сглаженных изображений. Более того, при высокой когерентности и резких краевых осцилляциях интенсивности такой метод даёт удовлетворительные результаты только после усреднения этих осцилляций [74].

4. Экспериментальные исследования микротрубок в монокристаллах карбида кремния методом фазового контраста

Хотя метод фазово-контрастного изображения на просвет в СИ отличается простотой принципиальной схемы эксперимента, на самом деле технические средства, обеспечивающие наблюдение и регистрацию изображений, устроены весьма сложно и снабжены автоматической системой управления. Типичная схема размещения экспериментального оборудования показана на рис. 5. Образец (кристаллическая пластина P) расположен на расстоянии r_s от источника СИ (на рисунке не показанного). При отсутствии оптических элементов, обеспечивающих временную когерентность пучка, последний проходит сквозь систему щелей, схематически изображённую одной щелью K, просвечивает образец и возбуждает свечение в диапазоне видимого света от кристаллического сцинтиллятора Sc. Последний явля-

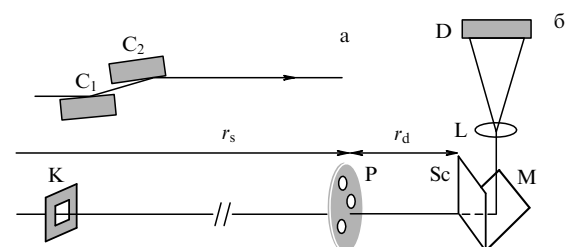


Рис. 5. Схема экспериментального оборудования для измерения фазово-контрастных изображений методом на просвет в СИ. (а) Кристаллический монохроматор настроен на отражение 111 от двух кристаллов кремния C_1 и C_2 . (б) При отсутствии монохроматора пучок СИ формируется щелью K и, пройдя сквозь образец P, содержащий микротрубки, достигает системы регистрации, состоящей из сцинтиллятора Sc, зеркала M, объектива L и ПЗС-детектора D. Источник СИ и детектор находятся на расстояниях соответственно r_s и r_d от образца.

ется частью системы регистрации, состоящей также из зеркала М, оптического объектива L и ПЗС-детектора D. Такой способ регистрации, т.е. проецирование увеличенного люминесцентного изображения на ПЗС-матрицу при помощи светового микроскопа, был впервые использован в работе Буша и Бонзе [121].

Качество изображения зависит от нескольких факторов: материала и толщины сцинтиллятора, фокусного расстояния объектива, динамического диапазона детектора и размера пиксела ПЗС-матрицы. Распространённым недостатком кристаллических сцинтилляторов из соединений, например CsI, CdWO₄, Y₃Al₅O₁₂(Ce), является нелинейность отклика при определённой энергии [122]. Большая толщина кристалла-сцинтиллятора вдоль пучка снижает разрешение, а при малой толщине срок службы сцинтиллятора сокращается. Улучшению эффективности и повышению разрешения системы детектирования посвящено немало работ (см., например, [123 – 125]). В таких работах принято приводить оптимизированную величину разрешения при эффективном размере пиксела. Последний равен частному от деления реального размера пиксела ПЗС-матрицы на увеличение объектива и составляет величину меньше микрометра. Однако при субмикрометровом размере пиксела разрешение возрастает, но чёткость изображения ухудшается.

Ещё один важный фактор, влияющий на качество изображения, — паразитный шум, который регистрирует детектор. Этот шум получается наиболее сильным в схеме без монохроматора (рис. 5б). В такой схеме спектр излучения весьма широкий, и обычно такое излучение называется "розовым пучком". Розовый пучок возникает естественным путём. Как известно, при уменьшении энергии фотонов интенсивность спектра СИ убывает вследствие поглощения во всех объектах на пути пучка, включая образец. А при увеличении энергии интенсивность СИ монотонно уменьшается. Поэтому спектр излучения позади образца имеет форму пика. В схеме на просвет изменение частоты очень слабо влияет на ход лучей, но меняет картину распределения интенсивности за счёт разного набега фазы в образце. Реальная картина зависит также от длины поперечной когерентности L_{lc} . Уменьшение ширины спектрального максимума положительно влияет на качество изображения. Выделение спектрального пика при заданной частоте осуществляют кристаллические монохроматоры, изготовленные из высокосовершенного кремния (рис. 5а), или рентгеновские зеркала из синтетических материалов [126, 127].

Оценим длину продольной когерентности L_{lc} для трёх рассмотренных выше случаев. Для розового пучка, когда полная энергия электронов равна 2,5 ГэВ, спектр излучения от поворотного магнита монотонно убывает в интервале от 5 до 40 кэВ. Учёт поглощения в бериллиевом окне и особенно в образце приводит к сильному ослаблению интенсивности излучения фотонов малых энергий. Например, для пластины SiC толщиной 0,49 мм ширина на половине высоты спектрального максимума, локализованного вблизи значения $E = 16$ кэВ, равна $\Delta E = 11$ кэВ [128]. Длина продольной когерентности определяется формулой $L_{lc} = hc/\Delta E$, где h — постоянная Планка, c — скорость света [129]. Для розового пучка она имеет очень малое значение: $L_{lc} = 1,1$ Å. При отражении от зеркала полуширина спектрального максимума сильно уменьшается по сравнению с розовым пучком.

При $\Delta E/E = 4 \times 10^{-3}$ получаем $L_{lc} = 194$ Å. Для двухкристального монохроматора на основе Si(111) $L_{lc} = 800$ Å при той же величине E излучения из поворотного магнита [130].

На источниках СИ третьего поколения с полной энергией электронов 2–2,5 ГэВ и током пучка электронов ~ 300 мА поворотные магниты обеспечивают высокую интенсивность только для розового пучка. Даже зеркало со средним спектральным разрешением $\sim 10^{-3}$ так сильно уменьшает поток фотонов, что экспозиция может увеличиться в 20 раз. Это существенно удлинит время экспериментов, особенно в методе томографии. По самым скромным подсчётам регистрация серии из 500 проекций потребует увеличения времени в 10^4 раз.

Для детекторов, измеряющих изображения в розовом пучке СИ, полезные сигналы должны быть существенно выше фона, желательно в десятки раз. Поэтому время экспозиции нужно выбирать таким образом, чтобы получать максимально возможную интенсивность, т.е. 16-битный детектор будет более предпочтителен. Детектор с диапазоном 12 бит лучше подходит для регистрации монохроматического излучения, большим достоинством которого является весьма низкое паразитное рассеяние. За подробным изложением отошлём к работе [39].

Помимо отношения сигнал/шум, следует позаботиться об эффективном размере пиксела ПЗС-матрицы. Сравним возможности двух детекторов M_1 и M_2 с размером пиксела соответственно $5,5 \times 5,5$ и 9×9 мкм. Пусть измеряется изображение микротрубки диаметром несколько микрометров. Качество изображения зависит от отношения размера пиксела к размеру объекта. Установка оптического объектива 20× уменьшает это отношение так, что при пересчёте на изображение эффективный размер пиксела становится 0,27 и 0,45 мкм соответственно для M_1 и M_2 . В ближнем поле, где размер изображения почти равен размеру объекта, детектор M_1 предпочтительнее, чем M_2 . Для измерений в дальнем поле, где размер изображения увеличивается, оба детектора вполне подходят. На самом деле реальный размер пиксела больше, чем эффективный, и разрешение детектора хуже ожидаемого.

Для определения размеров микропор в объёме монокристаллов SiC лучше всего подходят рентгеновские методы прямого наблюдения, а именно дифракционная топография и фазовая радиография. В обоих методах реальный размер можно определить только путём решения обратной задачи. И только последний метод характеризуется чувствительностью исключительно к размерам и форме микрообъекта. Покажем это сравнением данных, полученных для дислокационных микротрубок.

На рисунке 6 представлены рентгеновские топограммы, измеренные в белом СИ в геометрии Лауэ от образцов с ориентацией поверхности (11 $\bar{2}$ 0), которые приготовлены из двух разных кристаллов политипа 6H-SiC [131, 132]. В образце с низкой плотностью дефектов изображения винтовых супердислокаций имеют ровные края (рис. 6а). Однако при высокой плотности дефектов их форма искажается (рис. 6б). Структура изображения супердислокации, ось которой проходит внутри МТ, является весьма сложной. Она определяется контрастом трёх типов [133]: светлая середина и тёмные края формируются за счёт ориентационного контраста; распределение интенсивности снаружи тёмных краёв

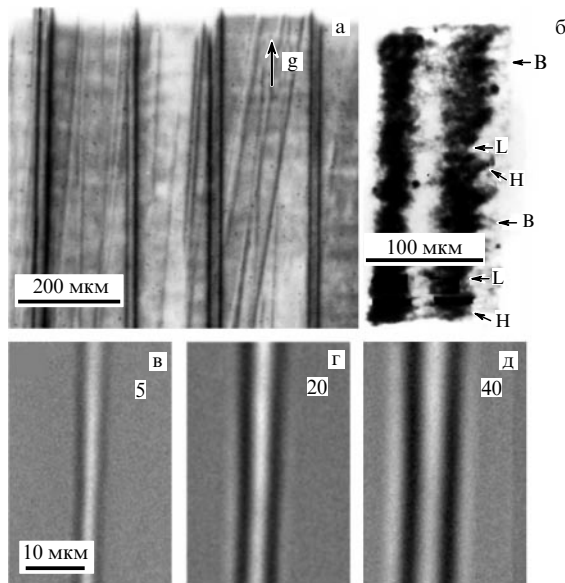


Рис. 6. (а) Рентгеновская топограмма на просвет, показывающая винтовые супердислокации в монокристалле 6H-SiC ($11\bar{2}0$). Отражение $g = 0006$ [131]. (б) Топограмма супердислокации, окружённой скоплениями дислокаций базисной плоскости. Вектор дифракции $g = \bar{2}2\bar{1}0$ обращён влево ($\lambda = 0,64 \text{ \AA}$). Маркеры В, Н и L указывают на области с разной величиной контраста [132]. (в–д) Фазово-контрастные изображения микротрубки, измеренные при разных расстояниях между образцом 4H-SiC ($\bar{1}100$) и детектором [152]. Расстояния в сантиметрах указаны цифрами на фрагментах. Основная длина волны $\lambda = 0,775 \text{ \AA}$.

обусловлено экстинкционным контрастом; динамический контраст сливается с фоном изображения.

С помощью моделирования ориентационного контраста были определены векторы Бюргерса супердислокаций (рис. 6а) [131]. Было установлено, что дислокации базисной плоскости могут объединяться в популяции, окружающие ядра супердислокаций [132]. Изображения дислокаций в таких скоплениях не разрешаются в виде отдельных линий на топограммах. Повышение или понижение их плотности вызывает усиление или ослабление контраста (рис. 6б). Очевидно, что изображения дислокационных микротрубок на топограммах целиком определяются распределением и величиной микродисторсии кристаллической решётки, а не морфологией микротрубки.

На рисунках 6в–д показаны фазово-контрастные изображения участка одной МТ, полученные на разных расстояниях r_d от образца. Цифры на изображениях указывают расстояние в сантиметрах. На малом расстоянии $r_d \leq 5$ см изображение МТ имеет вид светлой полосы относительно слабого контраста (рис. 6в). При увеличении расстояния структура изображения изменяется: ширина светлой полосы увеличивается, появляются чёрные полосы по её краям (рис. 6г) и дополнительные светлые полосы (рис. 6д). Заметим, что на изображении, полученном на расстоянии 5 см, поперечный размер трубки монотонно уменьшается в направлении сверху вниз.

В ближнем поле размер изображения коррелирует с истинным размером сечения, и можно сделать вывод, что сечение данной МТ действительно изменяется вдоль её оси. Интересно, что при $r_d = 20$ см изменение расстояния между чёрными полосами почти незаметно, а при

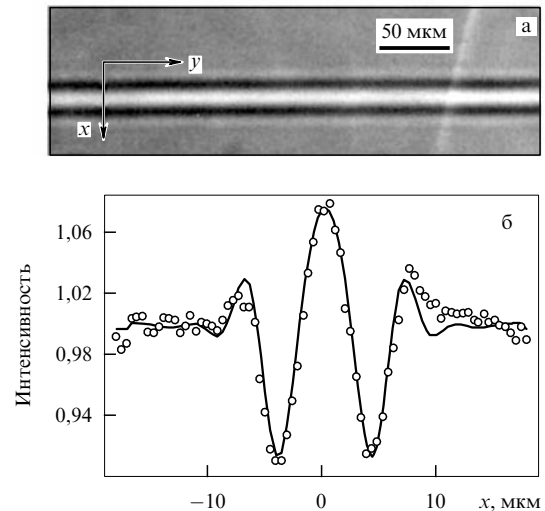


Рис. 7. (а) Фазово-контрастное изображение микротрубки в розовом пучке СИ. $E = 16 \text{ кэВ}$, $\Delta E = 11 \text{ кэВ}$. Расстояние от образца до детектора $r_d = 40 \text{ см}$ [39]. (б) Экспериментальный профиль интенсивности (круглые маркеры) и теоретическая кривая (сплошная линия) для случая наилучшего совпадения.

$r_d = 40$ см это расстояние выглядит неизменным. Изменяется только контраст изображения. Объяснение этого эффекта будет приведено ниже. Сравнение данных топографии и фазовой радиографии на рис. 6 демонстрирует преимущество последней в определении размеров микрообъектов. Однако будет показано (см. раздел 5), что фазово-контрастное изображение одного и того же объекта на разных расстояниях, во-первых, увеличивается, а во-вторых, изменяет свою структуру. Для решения обратной задачи нужно установить закономерности этого изменения.

Количественный анализ результатов эксперимента выполнен с помощью компьютерной программы моделирования изображений [128, 134–136]. Программа описана в разделе 5. Применим программу для определения размера сечения одной МТ. На рисунке 7а показан фрагмент изображения, измеренного в розовом пучке СИ ($L_{ic} = 21 \text{ мкм}$) [39]. Образец в форме пластины толщиной 490 мкм с ориентацией ($\bar{1}100$) был вырезан из кристалла 4H-SiC, выращенного методом сублимации [137] в направлении $\langle 0001 \rangle$, и тщательно отполирован с обеих сторон. Оси МТ были расположены параллельно поверхности пластины. Образец выставлялся перпендикулярно пучку так, чтобы оси микротрубок имели горизонтальное положение. Круглыми маркерами показаны нормированные экспериментальные значения интенсивности (рис. 7б) на расстоянии $r_d = 40$ см, измеренной поперёк оси МТ с помощью программы ImageJ [138].

В качестве первого приближения была задана модель сечения эллиптической формы. Программа выполняла подгонку экспериментального профиля интенсивности путём автоматического изменения исходных значений поперечного D и продольного D_0 диаметров соответственно в перпендикулярном и параллельном пучку направлениях. Широкий спектр излучения учитывался в расчёте путём суммирования изображений для монохроматических гармоник с весом, соответствующим реальному спектру СИ, измеряемому детектором. Программа сама рассчитывала спектр излучения с учётом всех

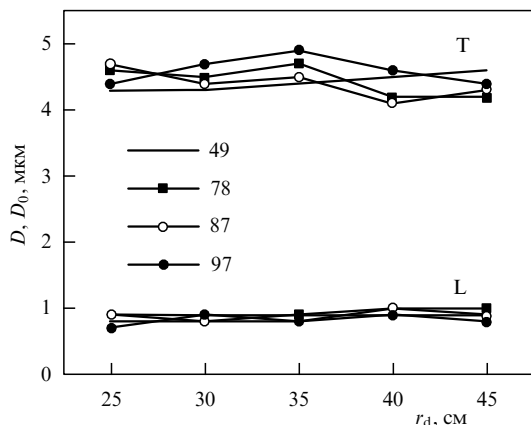


Рис. 8. Диаметры D и D_0 , определённые для четырёх сечений вдоль оси одной МТ, в зависимости от расстояния между образцом и детектором r_d . Положение сечений в микрометрах указано цифрами на поле графика. Т — поперечные (D) и L — продольные (D_0) диаметры [135, 136].

поглотителей на пути пучка, включая образец. Путём постепенных изменений исходной модели было получено наилучшее совпадение с экспериментальной кривой для $D = 1,36$ мкм и $D_0 = 1,82$ мкм. Теоретический профиль интенсивности, соответствующий минимуму суммы наименьших квадратов $\chi^2_{\min} = 9,8 \times 10^{-5}$, показан на рис. 7б сплошной линией.

Чтобы убедиться в том, что найденные диаметры сечения являются правильными, необходимо сделать подгонку изображений одной и той же МТ на разных расстояниях r_d . При этом реальный размер сечения не должен зависеть от расстояния. Справедливость этого утверждения гарантирует правильность постановки эксперимента и процедуры моделирования. На рисунке 8 представлен график зависимости размеров сечения от расстояния r_d для четырёх сечений, находящихся на близком расстоянии друг от друга [135, 136]. Хотя данные и не укладываются в одну линию, видно, что полученные параметры слабо изменяются как с расстоянием, так и вдоль оси трубки. Тем не менее поперечный и продольный диаметры D и D_0 различаются для этих сечений весьма заметно: D_0 равен всего 0,8–1 мкм, в то время как поперечный диаметр равен 4,5–5 мкм. Этот экспериментальный результат оказался довольно неожиданным.

В теории упругости эллиптическое сечение МТ было предсказано ранее. Анализируя равновесные модели морфологии полых ядер супердислокаций, авторы работы [139] установили, что, во-первых, круглые трубки вокруг винтовых дислокаций, предсказанные Франком [4], устойчивы в изотропном материале; во-вторых, трубки вокруг краевых дислокаций также устойчивы, но они не являются круглыми даже в изотропном материале. Полые ядра краевых супердислокаций имеют эллиптическую форму, обусловленную симметрией упругого поля этих дислокаций. Хирш [140] рассчитал упругие поля как для краевых, так и для винтовых дислокаций с полым ядром эллиптической формы.

Возвращаясь к результатам моделирования, отметим, что необычная форма сечения МТ, сильно вытянутая поперёк пучка, наблюдалась и для многих других МТ [39, 141, 142]. В согласии с экспериментальными наблю-

дениями другими методами — поляризационно-оптической микроскопией [143, 144] и ПЭМ [11], а также с утверждением о том, что как ступени роста, так и МТ могут быть вызваны дислокациями смешанного или даже чисто краевого типа [145], можно ожидать, что супердислокации внутри трубок с эллиптическим сечением не являются винтовыми. Однако, имея в виду, что трубки необычной формы наблюдались в местах скопления дефектов (по границам пор или включений других политипов), это было бы трудно доказать рентгеновскими методами. Применение рентгеновской топографии для анализа дислокаций в местах плотных скопления дефектов не дало однозначного ответа на этот вопрос [141]. Для объяснения эллиптического сечения МТ, а также изменения его размеров вдоль оси некоторых МТ была предложена модель превращения дислокаций в МТ за счёт неравновесных процессов трубчатой диффузии и коагуляции вакансий на дислокациях, параллельных оси роста кристалла [142].

Отметим, что МТ изменяются в процессе роста кристаллов. Это сложное явление включает образование новых МТ [7, 11–13], диссоциацию МТ с образованием дислокаций [146–148], взаимодействие с включениями других политипов [35, 36] и т.д. На рисунке 9а показана оптическая микрофотография ростовой поверхности эпитаксиального слоя 4Н-SiC, осаждённого на подложку того же политипа [146]. Перед наблюдением образец был протравлен в растворе КОН. Два вида ямок травления появились в том же месте, где в подложке была одна большая ямка (рис. 9б). Тёмные ямки гексагональной формы представляют собой дислокационные МТ, круглые ямки соответствуют элементарным винтовым дислокациям. Это указывает на то, что МТ проросла в слой, и винтовые дислокации образовались в процессе эпитаксии. Во время дальнейшего роста трубка заросла.

Другой пример — расщепление одной МТ на две другие МТ меньшего диаметра — можно видеть на рисунках 9в и г. Две ямки травления на поверхности кристалла 4Н-SiC, выявленные методом СЭМ (рис. 9в), соответствуют двум МТ в объёме кристалла (рис. 9г), которые образовались путём расщепления, как показал метод фазово-контрастного изображения в СИ [149].

В разделе 2 были перечислены реакции между дислокационными МТ, которые происходят, когда трубки вступают в контакт, касаясь друг друга своими поверхностями. Такие контактные реакции могут эффективно уменьшить плотность распределения МТ; однако, по мере уменьшения плотности, они становятся всё менее вероятными. Тем не менее дислокационные МТ продолжают взаимодействовать на расстоянии, уже бесконтактным способом. Эта новая форма эволюции МТ была обнаружена благодаря методу моделирования фазово-контрастных изображений. Метод позволил выявить коррелированные вариации поперечных сечений двух соседних МТ вдоль их осей. Основная идея, объясняющая это наблюдение, состоит в том, что МТ могут взаимодействовать путём обмена дислокациями [134]. Был разработан механизм бесконтактного взаимодействия, который может приводить к уменьшению поперечных сечений и к зарастанию трубок [150, 151].

Экспериментальные данные, демонстрирующие изменение размеров сечений, представлены на рис. 9д. На фазово-контрастном изображении две МТ, расположен-

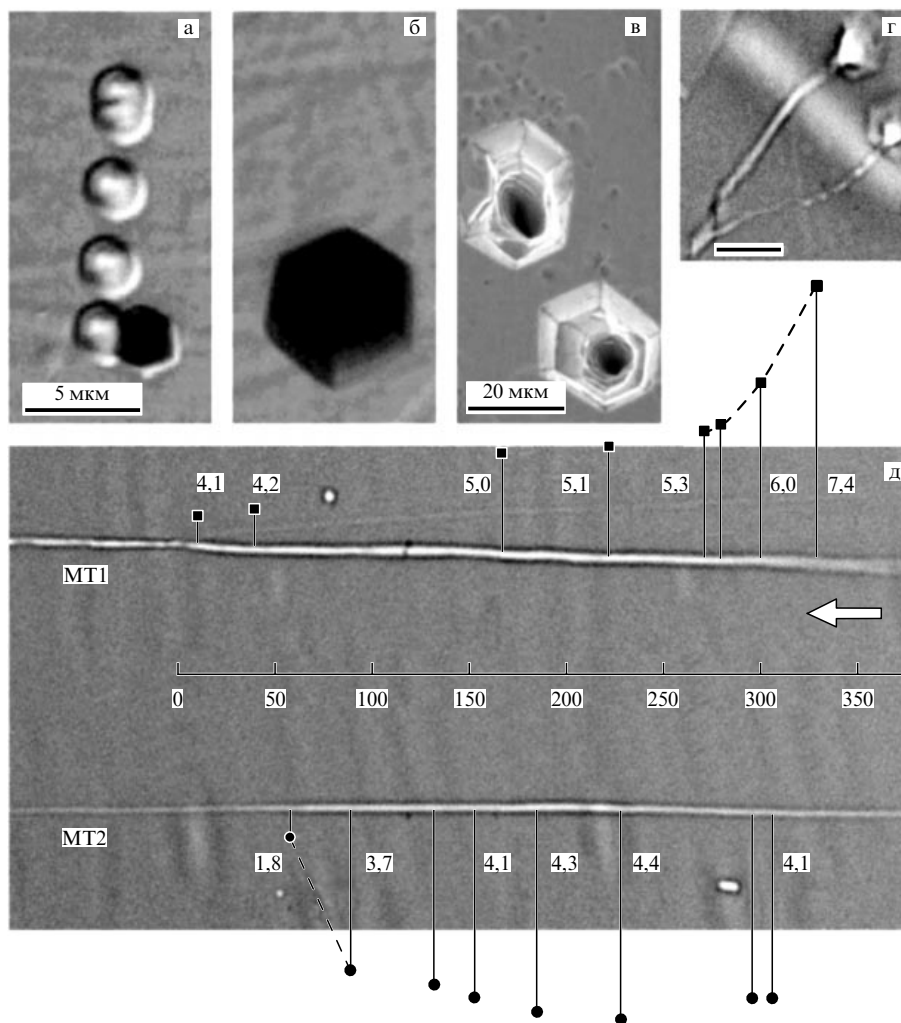


Рис. 9. Реакции расщепления дислокационной микротрубки на дислокации (а, б) [146] или на две другие микротрубки (в, г) [141]. Масштаб 50 мкм. (д) Коррелированные вариации поперечных сечений двух соседних микротрубок вдоль их осей [150]. Единицы длины указаны в микрометрах.

ные вверху, находятся в контакте, а третья МТ удалена от них. Поперечные диаметры каждой трубки, определённые с помощью программы моделирования в разных её сечениях, показаны квадратными и круглыми маркерами соответственно для МТ1 и МТ2 [134, 150]. Позиция маркера соответствует положению сечения, поперечные диаметры обозначены цифрами. Направление роста указано стрелкой, обращённой влево. Как можно видеть из рис. 9д, поперечный размер трубок резко изменяется по мере роста кристалла.

При этом наблюдается следующая корреляция между изменениями. Для МТ1 поперечный размер резко уменьшается от 7,4 до 5,3 мкм на интервале от 329 до 280 мкм вдоль её оси, тогда как для соседней с ней МТ2 уменьшение размера от 3,7 до 1,8 мкм происходит немного позже на интервале от 89 до 58 мкм. Поскольку поперечное сечение МТ связано с её вектором Бюргерса формулой Франка [4], наблюдаемый эффект можно объяснить реакциями между дислокациями. Во время роста кристалла одна микротрубка (МТ1) испускает дислокационную петлю, которая, расширяясь, достигает поверхности другой микротрубки (МТ2) и реагирует с её дислокацией. При этом знаки векторов Бюргерса винтовых дислокаций МТ1 и МТ2, а также поглощён-

ного сегмента петли могут быть таковы, что обе МТ уменьшают свои диаметры.

Сравнение неразрушающих методов исследования, представленное в этом разделе, показывает, что метод фазово-контрастного изображения на просвет не уступает и даже в некоторых случаях превосходит возможности каждого из других методов, таких как топография, СЭМ и оптическая микроскопия, для определения морфологии и размеров микропор в монокристаллах. Однако количественная информация не может быть получена фазово-контрастным методом без решения обратной задачи. Компьютерное моделирование изображений, которое развивается параллельно с методами вычисления профиля фазы, но самостоятельным путём, развито ещё недостаточно. Тем не менее применение метода на просвет для нужд материаловедения становится общепринятой практикой.

В будущем следует ожидать появления значительных достижений в результате повышения яркости источников СИ на накопительных кольцах и усовершенствования технологии производства детекторов излучения. В настоящее время почти повсеместно происходит реконструкция источников средней яркости с целью повышения энергии электронов в накопительном кольце. На

источниках с полной энергией электронов 3 ГэВ и током пучка электронов 300–400 мА использование ондуляторов и вигглеров существенно усиливает как интенсивность, так и жёсткость излучения. Очевидно, что для расширения возможностей методов фазовой радиографии и томографии необходимо и дальше повышать яркость источников СИ.

5. Компьютерная симуляция изображений и решение обратной задачи

Как отмечено в разделе 4, в большом числе работ изображения микротрубок в SiC были получены в экспериментах с розовым пучком, который имел весьма невысокую временную когерентность. При слабой временной когерентности пропадают детали изображения, расположенные далеко от центра, но центральная часть изображения всё же сохраняется. Кроме того, малые размеры диаметров поперечного сечения МТ (от одного до нескольких микрометров) по сравнению с эффективным разрешением детектора (примерно 0,5 мкм) вынуждают фиксировать изображения на большом расстоянии от образца (до 50 см).

Согласно оптическому аналогу соотношения неопределённости квантовой механики МТ с поперечным размером $D = 1,6$ мкм и для длины волны $\lambda = 0,08$ нм создаёт угловую расходимость рассеянного излучения $\theta = \lambda/D = 5 \times 10^{-5}$. При этом размер изображения на расстоянии $r_d = 50$ см формально равен $r_d\theta = 25$ мкм, т.е. значительно превосходит размер объекта и вполне может быть зафиксирован указанным детектором. Когерентное изображение МТ при освещении ограниченным пучком в дальнем поле представляет собой профиль квадрата модуля преобразования Фурье трансмиссионной функции МТ. В рассматриваемом нами случае пучок не ограничен, а изображение сильно искажено суммированием по широкому пику спектра излучения. При этом изображения для разных длин волн, вообще говоря, различаются, и суммирование не сводится к свёртке двух функций.

В таких условиях использовать прямые методы решения обратной задачи вычисления профиля фазы из регистрируемого детектором профиля интенсивности невозможно. Но всегда остаётся универсальный метод компьютерной симуляции изображений на основе некоторой упрощённой модели объекта. При моделировании МТ естественно рассматривать её в виде пустой трубки с эллиптическим сечением, которое задаётся двумя диаметрами D и D_0 в направлениях поперёк и вдоль пучка. Соответственно трансмиссионная функция такого объекта равна 1 при $|x| > R$, а при $|x| < R$ она равна

$$T(x) = \exp \left([i\Phi + M] \left(1 - \frac{x^2}{R^2} \right)^{1/2} \right),$$

$$\Phi = \frac{8\pi}{\lambda} \delta D_0, \quad M = \Phi \frac{\beta}{\delta}. \quad (14)$$

Здесь $R = D/2$, а параметры δ и β определены в формуле (3).

В работах [39, 128, 134–136, 141, 142, 150, 152–157] для симуляции изображений использовалась компьютерная программа FIMTIM (FITting MT IMage), которая вычисляла серию профилей интенсивности на детекторе для набора длин волн монохроматического излучения и

точечного источника в соответствии с формулами (7), (11), (14). Свёртка пропагатора Френеля с трансмиссионной функцией объекта вычислялась методом быстрого преобразования Фурье [158]. При этом фурье-образ трансмиссионной функции вычислялся численно, а фурье-образ пропагатора Френеля имеет аналитическое выражение. Обратное преобразование Фурье от произведения фурье-образов двух функций давало искомый ответ. Профили интенсивности затем искажались в процессе расчёта свёртки с функцией интенсивности в поперечном сечении источника и суммирования всех кривых для разных длин волн с весом, соответствующим спектру излучения, который вычислялся с учётом поглощения излучения в самом кристалле, содержащем МТ. При расчёте кривой задавались конкретные значения параметров D и D_0 .

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

Специфика данной задачи состояла в том, что было важно не только найти точку минимума, но и проверить форму минимума, чтобы иметь представление о том, с какой точностью вычисляются параметры D и D_0 . Для этого после нахождения точки, в которой достигается минимум, просчитывалась карта распределения функции $\chi^2(D, D_0)$ на плоскости её аргументов вблизи минимума. Оказалось, что в большом числе случаев линии уровней были сильно вытянуты вдоль гиперболы $DD_0 = \text{const}$. Это означает, что с высокой точностью определялась площадь сечения микротрубки, однако каждый из диаметров определялся с меньшей точностью.

Чтобы понять, почему так происходит, в работе [152] было получено аналитическое решение задачи в случае, когда поперечный диаметр сечения микротрубки $D \ll r_1$, где $r_1 = (\lambda r_d)^{1/2}$ — радиус первой зоны Френеля, а продольный диаметр D_0 настолько мал, что фаза $\Phi < 0,5$. Тогда для монохроматического излучения и точечного источника можно получить следующую приближённую формулу для профиля нормированной интенсивности:

$$I(x) \approx 1 + \frac{\pi^2 \delta}{\lambda r_1} D D_0 b(x) \cos \left(\pi \frac{x^2}{r_1^2} + \frac{\pi}{4} \right),$$

$$b(x) = \frac{2x_c}{x} J_1 \left(\frac{x}{x_c} \right), \quad x_c = \frac{r_1^2}{\pi D}. \quad (15)$$

Здесь $J_1(x)$ — функция Бесселя первого порядка.

В рассматриваемом нами случае $x_c \gg r_1$. Поэтому в центральной части изображения, когда $|x| < x_c$, структура изображения определяется только косинусом, который не зависит от диаметров сечения микротрубки. То есть профили интенсивности в изображении МТ имеют универсальный характер. А величина контраста опреде-

ляется только произведением DD_0 . На рисунке 7б показан график вычисленной по программе FIMTIM кривой распределения интенсивности, на которую наложены экспериментальные точки. Форму кривой можно объяснить с помощью формулы (15), хотя параметры МТ в данном конкретном случае не вполне соответствуют необходимым условиям её применимости.

Так, ширина рассеянного МТ излучения определяется параметром x_c , который пропорционален $r_d\theta$. Но из-за того, что пучок не ограничен размерами объекта внутри этой области, возникают осцилляции интенсивности, причём первый максимум имеет полуширину, пропорциональную диаметру первой зоны Френеля для расстояния r_d , который пропорционален $r_d^{1/2}$. Это изображение имеет вид светлой зоны в центре, окружённой тёмными зонами и далее снова светлыми зонами. Такого типа изображения показаны на рисунках 6в–д, 7а. Таким образом, хотя размеры изображений МТ всё равно увеличиваются с ростом расстояния образец–детектор, но не так быстро, как при дифракции на щели. Заметим, что хотя косинус имеет много осцилляций с одинаковой амплитудой, но после суммирования по широкому спектру излучения остаются только центральная светлая и ближайшие тёмные полосы. Только на некоторых изображениях, полученных с более когерентным излучением, можно наблюдать дополнительные зоны Френеля.

Из сказанного выше следует, что площадь сечения микротрубки можно определить всегда. А раздельно диаметры D и D_0 можно найти только в том случае, когда не выполняются условия $D \ll r_1$ и $\Phi < 0,5$. В частности, нельзя использовать слишком большие расстояния r_d , т.е. разумно искать компромисс между размером изображения и его информативностью.

Заметим, что из одной проекции невозможно однозначно определить реальные диаметры сечения МТ. Получаемые с помощью программы значения D и D_0 необходимо интерпретировать, привлекая дополнительную информацию. Так, параметр D_0 является продольным диаметром микротрубки D_{MT} только в том случае, если ось МТ ориентирована перпендикулярно направлению пучка, т.е. угол α между осью МТ и направлением пучка равен 90° . В общем случае $D_{MT} = D_0 \sin \alpha$. Определить значение угла α можно только поворотом образца на 90° . Но при этом толщина образца будет очень большой, поскольку обычно образцы имеют вид пластины. Чтобы получить возможность крутить образец, он должен быть специально приготовлен.

В пластинах SiC с ориентацией (0001) МТ ориентированы почти параллельно направлению пучка, и угол α имеет очень малое значение. При этом параметр D_0 эффективно оказывается очень большим и $\Phi \gg 2\pi$. Расчёт по программе для такого случая приводит к результату, что в центре изображений таких МТ имеется чёрная полоса, ширина которой может быть разной. И такие чёрные изображения МТ действительно часто наблюдаются [154]. При вращении образца их контраст может измениться до нормального, но при этом явно видно, что они наклонены под большим углом к оси вращения.

Такая же проблема возникает и для вертикальных МТ с эллиптическим сечением в образцах, параллельных оси роста (0001). Проекция эллипса на разные направления имеет разную ширину, т.е. параметр D соответствует ширине проекции эллипса на определённое направление, а максимальная фаза Φ , пропорциональная D_0 , также

будет зависеть от направления проекции, потому что площадь сечения, пропорциональная произведению DD_0 , сохраняется при вращении. Размеры малой и большой осей эллипса можно получить как минимальное и максимальное значения D или D_0 при вращении образца на 180° . А при вращении на 90° значения D и D_0 меняются местами. Однако при исследовании изменений параметров D и D_0 в разных местах вдоль оси МТ это не так принципиально. Сам факт такого изменения можно зафиксировать и на одной проекции [157].

Для микропор с ограниченными размерами в трёх направлениях, например сферических пустот, можно использовать аналогичный подход, но в двух измерениях. При этом трансмиссионная функция будет зависеть от двух координат x' и y' , а интеграл в формуле (11) должен вычисляться по двум переменным. Соответственно добавляется ещё один пропагатор Френеля, зависящий от переменных u и u' . Изображение микропоры получается на плоскости переменных (x, y) . Такие расчёты были выполнены в работе [156] для монохроматического излучения и микропор в форме капсул, т.е. цилиндров ограниченной длины. Полученные в результате расчётов изображения хорошо соответствовали экспериментальным изображениям как в монохроматическом, так и в полихроматическом излучении. Было сделано предположение, что картина сильно портится вследствие низкого разрешения детектора, поэтому изображение в монохроматическом излучении почти совпадает с полихроматическим изображением.

Для сферических пустот расчёты были выполнены в работе [39]. Было показано, что хотя в целом расчётные изображения для правильного радиуса сферических пустот соответствуют эксперименту, но они имеют тонкие детали, которые эксперимент не выявляет даже в монохроматическом излучении. При этом интересной особенностью двумерных экспериментальных изображений является то, что картина имеет одинаковое разрешение как в горизонтальном, так и в вертикальном направлении, хотя размер источника в этих направлениях сильно различается: в горизонтальном направлении размер источника в несколько раз больше, чем в вертикальном. При этом для размера пиксела 0,25 мкм изображение должно было бы быть более чётким и показывать мелкие детали, которые видны на расчётных кривых.

Этот экспериментальный факт до сих пор не получил разумного объяснения, конкретная причина такого явления остаётся неясной. Возможными причинами могут быть следующие: эффективное разрешение детектора значительно хуже, чем следует из оценок размера пиксела согласно оптической схеме; вертикальный размер источника мал, но его положение в пространстве может изменяться во времени, эффективно приводя к увеличению размера источника; монохроматор может приводить к ухудшению вертикальной пространственной когерентности. В процессе каждого эксперимента необходимы тщательные исследования степени когерентности излучения на модельных образцах, которые обычно не проводятся из-за ограниченного рабочего времени на источниках СИ.

6. Заключение

Рассмотрены различные аспекты метода фазово-контрастного изображения на просвет в синхротронном излуче-

нии применительно к измерению изображений микропор в монокристаллах карбида кремния. После опубликования в 1995 г. пионерской работы [22], предложившей этот метод, он широко использовался в самых разных областях науки. Однако по использованию метода для количественного анализа микропор в монокристаллах было сделано сравнительно мало исследований, и его применение для микропор с размерами от долей микрометра до нескольких микрометров ни разу не становилось предметом литературного обзора. Данный обзор восполняет этот пробел.

Довольно долгое время фазово-контрастные изображения использовались лишь для экспериментального наблюдения за состоянием микроструктуры вещества. Примером такого подхода является исследование природы микропор в квазикристаллах, которое проводилось на источнике СИ в Гренобле (ESRF) группой Барушеля [159–161]. Вместе с тем экспериментальный метод может обеспечить количественную информацию при использовании теоретических методов компьютерного моделирования и решения обратной задачи. Экспериментальное исследование методами фазовой радиографии и топографии переросло в количественный анализ контраста изображений в ближнем поле при поддержке численного моделирования [62].

Описанный в настоящем обзоре метод стал весьма популярным в Восточной Азии, где он положил начало использованию рентгеновского фазового контраста на источниках BSRF (Beijing Synchrotron Radiation Facility) в Китае, PLS (Pohang Light Source) в Южной Корее и TPS (Taiwan Photon Source) в Тайбее, Тайвань. Сравнительно простая схема метода сделала его привлекательным для самых разных целей. Разместив относительно сложное и массивное оборудование, исследователи изучают процессы отжига, затвердевания, плавления, осаждения и т.д. Однако адаптация метода, разработанного в ESRF (Гренобль, Франция), т.е. на самом лучшем источнике, к условиям источников средней яркости, натолкнулась на серьёзную проблему. С самого начала метод стали эксплуатировать в розовом пучке, т.е. без использования монохроматора. Заметные успехи были связаны с исследованием биомедицинских объектов [162–165], а также с *in situ* экспериментами в условиях ближнего поля [166]. Однако применения метода для монокристаллических материалов электронной техники, например, SiGe, SiC, Al₂O₃, содержащих микронеоднородности, продемонстрировали ограничения и недостатки, к которым относятся упрощение и искажение структуры изображения в результате суммирования по спектру. Это привело к невозможности использования прямых методов решения обратной задачи. Вместо них для таких относительно простых объектов, как микротрубки, были разработаны методы моделирования объектов двумя параметрами и определения параметров из сравнения расчётных и экспериментальных изображений.

В настоящее время происходит переход к экспериментам в монохроматическом СИ. Этому способствуют такие проекты, как реконструкция источника PLS без его остановки, строительство новых станций на источниках TPS, PLS и переход на источники следующего поколения в Шанхае и в Поханге. Не только в Азии, но и в мире в целом получение фазово-контрастных изображений стало одним из ключевых пунктов программ модернизации почти всех крупных источников СИ.

Список литературы

1. Kimoto T *Prog. Cryst. Growth Charact. Mater.* **62** 329 (2016)
2. Лучинин В, Таиров Ю *Современная электроника* (7) 12 (2009)
3. Лебедев А, Сбруев С *Электроника: наука, технология, бизнес* (5) 28 (2006)
4. Frank F C *Acta Cryst.* **4** 497 (1951)
5. Verma A, Krishna P *Polymorphism and Polytypism in Crystals* (New York: Wiley, 1966); Пер. на русск. яз.: Верма А, Кришна П *Полиморфизм и политипизм в кристаллах* (М.: Мир, 1969)
6. Si W et al. *J. Electron. Mater.* **26** 128 (1997)
7. Ma X *J. Appl. Phys.* **99** 063513 (2006)
8. Heindl J et al. *J. Cryst. Growth* **179** 510 (1997)
9. Strunk H P et al. *Adv. Eng. Mater.* **2** 386 (2000)
10. Ma X *Mater. Sci. Eng. B* **129** 216 (2006)
11. Heindl J et al. *Phys. Rev. Lett.* **80** 740 (1998)
12. Dudley M et al. *Appl. Phys. Lett.* **75** 784 (1999)
13. Ohtani N et al. *J. Cryst. Growth* **226** 254 (2001)
14. Eddy C R (Jr.), Gaskill D K *Science* **324** 1398 (2009)
15. Müller St G et al. *J. Cryst. Growth* **352** 39 (2012)
16. Gabor D *Nature* **161** 777 (1948)
17. Weon B M et al. *Int. J. Nanotechnol.* **3** 280 (2006)
18. Nugent K A *Adv. Phys.* **59** 1 (2010)
19. Mayo S C et al. *Materials* **5** 937 (2012)
20. Лидер В В, Ковальчук М В *Кристаллография* **58** 764 (2013); Лидер В В, Ковальчук М В *Crystallogr. Rep.* **58** 769 (2013)
21. Endrizzi M *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **878** 88 (2018)
22. Snigirev A et al. *Rev. Sci. Instrum.* **66** 5486 (1995)
23. Cloetens P et al. *J. Phys. D* **29** 133 (1996)
24. Takasu S, Shimanuki S *J. Cryst. Growth* **24–25** 641 (1974)
25. Hawley M et al. *Science* **25** 1587 (1991)
26. Qian W et al. *Appl. Phys. Lett.* **67** 2284 (1995)
27. Valcheva E, Paskova T, Monemar B *J. Cryst. Growth* **255** 19 (2003)
28. Чернов А А *УФН* **73** 277 (1961); Chernov A A *Sov. Phys. Usp.* **4** 116 (1961)
29. Pandey D, Krishna P *Mater. Sci. Eng.* **20** 243 (1975)
30. Krishna P, Jiang S-S, Lang A R *J. Cryst. Growth* **71** 41 (1985)
31. Tairov Yu M, Tsvetkov V F *J. Cryst. Growth* **52** 146 (1981)
32. Glass R C et al. *J. Cryst. Growth* **132** 504 (1993)
33. Neudeck P G et al. *IEEE Trans. Electron. Dev.* **46** 478 (1999)
34. Huang X R et al. *J. Appl. Cryst.* **32** 516 (1999)
35. Gutkin M Yu et al. *J. Appl. Phys.* **100** 093518 (2006)
36. Gutkin M Yu et al. *Phys. Rev. B* **76** 064117 (2007)
37. Gutkin M Yu et al. *J. Appl. Phys.* **106** 123515 (2009)
38. Gutkin M Yu et al., in *Silicon Carbide — Materials, Processing and Applications in Electronic Devices* (Ed. M Mukherjee) (Croatia: Intech Publ., 2011) p. 187
39. Argunova T S et al., in *Microscopy: Advances in Scientific Research and Education* (Ed. A Méndez-Vilas) (Badajoz, Spain: Formatex Research Center, 2014) p. 955
40. Gutkin M Yu et al. *Appl. Phys. Lett.* **83** 2157 (2003)
41. Gutkin M Yu et al. *J. Appl. Phys.* **94** 7076 (2003)
42. Gutkin M Yu et al. *Proc. SPIE* **5831** 125 (2005)
43. Аргунова Т С и др. *Поверхность* (8) 59 (2005)
44. Augustine G et al. *Phys. Status Solidi B* **202** 137 (1997)
45. Takahashi J, Ohtani N *Phys. Status Solidi B* **202** 163 (1997)
46. Nakamura D et al. *Nature* **430** 1009 (2004)
47. Мохов Е Н, Нагалюк С С *Письма в ЖТФ* **37** (21) 25 (2011); Mokhov E N, Nagalyuk S S *Tech. Phys. Lett.* **37** 999 (2011)
48. Argunova T S et al. *Mater. Sci. Forum* **821–823** 1011 (2015)
49. Аргунова Т С и др. *ФТТ* **57** 2400 (2015); Argunova T S et al. *Phys. Solid State* **57** 2473 (2015)
50. Argunova T S et al. *J. Mater. Sci.* **52** 4244 (2017)
51. Mokhov E N et al. *CrystEngComm* **19** 3192 (2017)
52. Argunova T S et al. *Crystals* **7** (6) 163 (2017)
53. Denisov A V et al. *J. Cryst. Growth* **344** 38 (2012)
54. Bunoiu O M, Duffar Th, Nicoara I *Prog. Cryst. Growth Character. Mater.* **56** 123 (2010)
55. Kohn V, Snigireva I, Snigirev A *Phys. Rev. Lett.* **85** 2745 (2000)
56. Kohn V, Snigireva I, Snigirev A *Opt. Commun.* **198** 293 (2001)
57. Snigireva I, Kohn V, Snigirev A *Nucl. Instrum. Meth. A* **467–468** 925 (2001)
58. Снигирев А А и др. *Поверхность* (1) 3 (2007); Snigirev A A et al. *J. Synch. Investig.* **1** 1 (2007)
59. Kak A C, Slaney M *Principles of Computerized Tomographic Imaging* (New York: IEEE Press, 1988)
60. Stevenson A W et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **199** 427 (2003)
61. Wu X, Liu H J. *X-Ray Sci. Technol.* **11** 33 (2003)
62. Agliozzo S, Cloetens P *J. Microscopy* **216** 62 (2004)
63. Zabler S et al. *Rev. Sci. Instrum.* **76** 073705 (2005)

64. Nesterets Ya I et al. *Rev. Sci. Instrum.* **76** 093706 (2005)
65. Arhatari B D et al. *Rev. Sci. Instrum.* **75** 5271 (2004)
66. Arhatari B D et al. *Rev. Sci. Instrum.* **76** 113704 (2005)
67. Nesterets Ya I et al. *Opt. Commun.* **259** 19 (2006)
68. Nesterets Ya I *Opt. Commun.* **281** 533 (2008)
69. Gureyev T E et al. *Opt. Express* **16** 3223 (2008)
70. Gureyev T E, Roberts A, Nugent K A *J. Opt. Soc. Am. A* **12** 1932 (1995)
71. Gureyev T E, Roberts A, Nugent K A *J. Opt. Soc. Am. A* **12** 1942 (1995)
72. Gureyev T E, Nugent K A *J. Opt. Soc. Am. A* **13** 1670 (1996)
73. Nugent K A et al. *Phys. Rev. Lett.* **77** 2961 (1996)
74. Kohn V G *Phys. Scripta* **56** 14 (1997)
75. Nakajima N *Appl. Opt.* **37** 6219 (1998)
76. Cong W-X, Chen N-X, Gu B-Y *Appl. Opt.* **37** 6906 (1998)
77. Gureyev T E, Wilkins S W *Opt. Commun.* **147** 229 (1998)
78. Tommasini R et al. *Opt. Commun.* **153** 339 (1998)
79. Paganin D, Nugent K A *Phys. Rev. Lett.* **80** 2586 (1998)
80. Gureyev T E et al. *J. Phys. D* **32** 563 (1999)
81. Cheng J, Han S *Opt. Commun.* **172** 17 (1999)
82. Gureyev T E *Optik* **110** 263 (1999)
83. Gureyev T E et al. *Phys. Rev. Lett.* **86** 5827 (2001)
84. Paganin D et al. *J. Microscopy* **206** 33 (2002)
85. Mayo S C et al. *J. Microscopy* **207** 79 (2002)
86. Gureyev T E et al. *J. Synchrotron Rad.* **9** 148 (2002)
87. Suzuki Y, Yagi N, Uesugi K *J. Synchrotron Rad.* **9** 160 (2002)
88. Schelokov I, Weitkamp T, Snigirev A *Opt. Commun.* **213** 247 (2002)
89. Hennelly B, Sheridan J T *Opt. Commun.* **226** 61 (2003)
90. Gureyev T E et al. *Opt. Commun.* **231** 53 (2004)
91. Kohn V et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **543** 306 (2005)
92. Gureyev T E et al. *Opt. Commun.* **259** 569 (2006)
93. Shioya H, Gohara K *Opt. Commun.* **266** 88 (2006)
94. Marchesini S *Rev. Sci. Instrum.* **78** 011301 (2007)
95. Paganin D M, Gureyev T E *Opt. Commun.* **281** 965 (2008)
96. Langer M et al. *Med. Phys.* **35** 4556 (2008)
97. Kashyap Y S et al. *J. Synchrotron Rad.* **17** 799 (2010)
98. Burvall A et al. *Opt. Express* **19** 10359 (2011)
99. Weitkamp T et al. *J. Synchrotron Rad.* **18** 617 (2011)
100. Diemoz P C et al. *J. Synchrotron Rad.* **22** 1072 (2015)
101. Gureyev T E et al. *J. Opt. Soc. Am. A* **34** 2251 (2017)
102. Raven C et al. *Appl. Phys. Lett.* **69** 1826 (1996)
103. Bronnikov A V *Opt. Commun.* **171** 239 (1999)
104. Spanne P et al. *Phys. Med. Biol.* **44** 741 (1999)
105. Cloetens P et al. *Appl. Phys. Lett.* **75** 2912 (1999)
106. Cloetens P et al. *Proc. SPIE* **3772** 279 (1999)
107. Baruchel J et al. *J. Synchrotron Rad.* **7** 196 (2000)
108. Barty A et al. *Opt. Commun.* **175** 329 (2000)
109. Weitkamp T et al. *Proc. SPIE* **4503** 92 (2002)
110. McMahon P J et al. *Opt. Commun.* **217** 53 (2003)
111. Peele A G et al. *Rev. Sci. Instrum.* **76** 083707 (2005)
112. Zabler S et al. *Opt. Express* **14** 8584 (2006)
113. Groso A et al. *Appl. Phys. Lett.* **88** 214104 (2006)
114. Gureyev T E, Nesterets Ya I, Mayo S C *Opt. Commun.* **280** 39 (2007)
115. Arhatari B D, De Carlo F, Peele A G *Rev. Sci. Instrum.* **78** 053701 (2007)
116. Vagberg W et al. *Sci. Rep.* **5** 16625 (2015)
117. Baran P et al. *Phys. Med. Biol.* **62** 2315 (2017)
118. Nesterets Ya I, Gureyev T E, Dimmock M R *J. Phys. D* **51** 115402 (2018)
119. Gerchberg R W, Saxton W O *Optik* **35** 237 (1975)
120. Pfeiffer F *Nature Photon.* **12** 9 (2018)
121. Bonse U, Busch F *Prog. Biophys. Molec. Biol.* **65** 133 (1996)
122. Dorenbos P et al. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **42** 2190 (1995)
123. Martin T, Koch A *J. Synchrotron Rad.* **13** 180 (2006)
124. Rack A et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **586** 327 (2008)
125. Danilewsky A N et al. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **266** 2035 (2008)
126. Kazimirov A et al. *J. Synchrotron Rad.* **13** 204 (2006)
127. Rack A et al. *J. Synchrotron Rad.* **17** 496 (2010)
128. Kohn V G, Argunova T S, Je J H *Appl. Phys. Lett.* **91** 171901 (2007)
129. Афанасьев А, Кон В *Кристаллография* **22** 622 (1977)
130. Matsushita T, Hashizume H *Handbook of Synchrotron Radiation* (Amsterdam: North-Holland, 1983)
131. Dudley M, Huang X R, Huang W *J. Phys. D* **32** A139 (1999)
132. Vetter W, Dudley M *J. Appl. Cryst.* **34** 20 (2001)
133. Bowen D K, Tanner B K *High Resolution X-ray Diffractometry and Topography* (London: Taylor and Francis, 1998); Пер. на русск. яз.: Боуэн Д К, Таннер Б К *Высокоразрешающая рентгеновская дифрактометрия и топография* (СПб.: Наука, 2002)
134. Gutkin M Yu et al. *Appl. Phys. Lett.* **93** 151905 (2008)
135. Аргунова Т С, Кон В Г, Же Ж Н *Поверхность* (12) 48 (2008); Argunova T S, Kohn V G, Je J H *J. Surf. Investig.* **2** 861 (2008)
136. Argunova T S et al. *Phys. Status Solidi A* **206** 1833 (2009)
137. Vodakov Yu A et al. *Phys. Status Solidi B* **202** 177 (1997)
138. ImageJ. Download, <http://imagej.nih.gov/ij/download.html>
139. Srolovitz D J et al. *Scripta Mater.* **39** 379 (1998)
140. Hirth J P *Acta Mater.* **47** 1 (1998)
141. Argunova T S et al., in *Physics and Technology of Silicon Carbide Devices* (Ed. Y Hijikata) (Croatia: Intech Publ., 2013) p. 27
142. Аргунова Т С и др. *ФТТ* **57** 733 (2015); Argunova T S et al. *Phys. Solid State* **57** 752 (2015)
143. Ohmoto H, Kato T, Okuda T *Mater. Sci. Semicond. Process.* **4** 483 (2001)
144. Ma X, Parker M, Sudarshan T S *Appl. Phys. Lett.* **80** 3298 (2002)
145. Strunk H P *J. Cryst. Growth* **160** 184 (1996)
146. Kamata I et al. *Jpn. J. Appl. Phys.* **39** 6496 (2000)
147. Epelbaum B M, Hofmann D J *J. Cryst. Growth* **225** 1 (2001)
148. Yakimova R et al. *J. Appl. Phys.* **98** 034905 (2005)
149. Gutkin M Yu et al. *J. Appl. Phys.* **92** 889 (2002)
150. Gutkin M Yu et al. *Phys. Status Solidi A* **209** 1432 (2012)
151. Sheinerman A et al. *Mater. Sci. Forum* **740–742** 597 (2013)
152. Kohn V G, Argunova T S, Je J H *J. Phys. D* **43** 442002 (2010)
153. Кон В Г, Аргунова Т С, Же Ж Н *Поверхность* (1) 5 (2011); Kohn V G, Argunova T S, Je J H *J. Surf. Invest.* **5** 1 (2011)
154. Кон В Г, Аргунова Т С, Же Ж Н *Поверхность* (10) 60 (2012); Kohn V G, Argunova T S, Je J H *J. Surf. Invest.* **6** 840 (2012)
155. Kohn V G, Argunova T S, Je J H *AIP Adv.* **3** 122109 (2013)
156. Kohn V G, Argunova T S, Je J H *AIP Adv.* **4** 097134 (2014)
157. Аргунова Т С и др. *Кристаллография* **61** 879 (2016); Argunova T S et al. *Crystallogr. Rep.* **61** 914 (2016)
158. Van Loan C *Computational Frameworks for the Fast Fourier Transform* (Philadelphia: SIAM, 1992)
159. Mancini L et al. *Phil. Mag. A* **78** 1175 (1998)
160. Gastaldi J et al. *J. Phys. D* **32** A152 (1999)
161. Agliozzo S et al. *Phys. Rev. B* **69** 144204 (2004)
162. Hwu Y et al. *J. Phys. D Appl. Phys.* **35** R105 (2002)
163. Baik S et al. *Rev. Sci. Instrum.* **75** 4355 (2004)
164. Hwu Y et al. *Phys. Med. Biol.* **49** 501 (2004)
165. Meuli R et al. *Eur. Radiol.* **14** 1550 (2004)
166. Tsai W L et al. *Nature* **417** 139 (2002)

Study of micropores in single crystals by in-line phase contrast imaging with synchrotron radiation

T.S. Argunova⁽¹⁾, V.G. Kohn⁽²⁾

⁽¹⁾ Ioffe Institute, ul. Politekhnicheskaya 26, 194021 St. Petersburg, Russian Federation

⁽²⁾ National Research Center "Kurchatov Institute", pl. Akademika Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russian Federation

E-mail: ⁽¹⁾ argunova2002@mail.ru, ⁽²⁾ kohnvict@yandex.ru

Some single crystals that are of importance for engineering contain micropores of various shapes, including micropipes, empty cylinders whose section sizes vary from fractions of micrometer to several micrometers. We describe properties of such objects in a silicon carbide single crystal and a method of observing and exploring those objects, namely, in-line phase contrast imaging with synchrotron radiation. We also review the history of development and current status of this method.

Keywords: single crystals, silicon carbide, micropores, micropipes, phase contrast, synchrotron radiation

PACS numbers: 42.25.Fx, 42.25.Kb, **61.72.-y**, 61.72.Ff, 61.72.Lk

Bibliography — 166 references

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **189** (6) 643–658 (2019)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2018.06.038371>

Received 16 April 2018, revised 15 June 2018

Physics–Uspekhi **62** (6) (2019)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNe.2018.06.038371>