

О ВОЗМОЖНОСТИ КОНВЕКТИВНОГО ПЕРЕНОСА ТЕПЛА В ПРОЦЕССЕ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННОГО ПЛАВЛЕНИЯ КРЕМНИЯ

Проведенное нами исследование [1] воздействия излучения рубинового лазера (длительность импульса $\tau_p=80$ нс) на монокристаллический кремний показало, что при плотностях энергии облучения W выше порога плавления W_m расчетные значения пиковой температуры поверхности $T_p(W)$ существенно превышает измеренные, в то время, как рассчитанная и экспериментальная зависимости времени существования жидкой фазы $\tau(W)$ согласуются. По мере увеличения W различие по T_p возрастает до сотен градусов. Также показано, что результаты расчета и эксперимента совпадают как по пиковой температуре, так и по времени существования расплава, если предположить, что коэффициент теплопроводности k жидкой фазы приблизительно в 3 раза превышает справочное значение, что весьма сомнительно. Повышенную эффективность переноса тепла также можно объяснить развитием гидродинамического движения в стадии лазерно-индуцированного плавления Si, которое, как известно, есть фазовый переход полупроводниковый кристалл – жидкий металл.

Гидродинамические явления могут быть обусловлены генерацией поверхностных периодических структур при воздействии мощного лазерного излучения [2–5]. Эффект возникновения поверхностных периодических структур обусловлен дифракцией падающей пространственно-когерентной световой волны на исходных поверхностных шероховатостях и интерференцией (дифрагированных волн с волной, прошедшей в среду), создающей латеральное пространственно-периодическое температурное поле. Благодаря этому возникают силы, увеличивающие амплитуды затравочных шероховатостей, что ведет к неустойчивости, при которой амплитуды материальных возмущений, модулирующих рельеф поверхности, и связанные с ними амплитуды дифрагированных волн экспоненциально нарастают во времени. Если плотность энергии в лазерном импульсе $W < W_m$, то роль таких материальных возмущений могут играть поверхностные акустические волны. При $W \approx W_m$ имеет место неустойчивость капиллярных волн, при еще больших значениях

W - интерференционная неустойчивость испарения поверхности. Конвективное движение в расплаве может быть вызвано также термоэлектрическим эффектом [6].

Рассмотрим слой расплава толщиной h , в приповерхностной области которого (в скин-слое) происходит выделение тепла при поглощении излучения с плотностью потока q . Тогда можно записать

$$k \frac{dT}{dz} = q \quad (1)$$

В том случае, если существует дополнительный механизм переноса тепла, уменьшающий температуру поверхности на $\Delta T = T - T_1$ ($T, T_1 \approx \Delta T$), имеем

$$(k + k_1) \frac{dT_1}{dz} = q = (k + k_1) \frac{d(T - \Delta T)}{dz} \quad (2)$$

где k_1 - коэффициент, учитывающий эффект усиления теплопереноса

Полагая, что $\frac{d\Delta T}{dz} \approx \frac{\Delta T}{h}$, из (1) и (2) находим

$$k_1 = k \frac{k \frac{\Delta T}{h}}{q - k \frac{\Delta T}{h}} \approx \frac{k^2}{q} \frac{\Delta T}{h} \quad (3)$$

В [4] исследовалась устойчивость горизонтального слоя жидкости, нагреваемой со стороны свободной поверхности. Было показано, что при достаточно больших плотностях потока излучения под действием термокапиллярных сил в расплаве может происходить развитие неустойчивости поверхностных волн, которое приводит к понижению температуры поверхности расплава ΔT , т. е. к эффективному увеличению переноса тепла в приповерхностном слое. Если использовать выражение для ΔT из [4]

$$\Delta T \approx (\xi K)^2 \frac{q_i}{2k} \left(\frac{k}{2\rho c \omega} \right)^{1/2}, \quad (4)$$

где $\xi = a(q q_i - 1)^{1/2}$ - амплитуда смещений поверхности, $a^2 = \sigma/\rho g$, σ - коэффициент поверхностного натяжения, ρ - плотность, g - ускорение свободного падения, c - удельная теплоемкость, $\omega^2 = \omega_0^2 \text{th}(Kh)$, $\omega_0 =$

частота гравитационно-капиллярной волны с волновым числом K , q , пороговое значение плотности теплового потока для возбуждения волны, то можно записать

$$k_1 = k \frac{(aK)^2 \left(\frac{k}{2\rho c \omega} \right)^{1/4} (q - q_0)}{q} \quad (5)$$

Максимальный инкремент неустойчивости соответствует волнам, находящимся в резонансе $C_1 K \approx \omega_0$ ($C_1^2 = q(d\sigma/dT)/\rho k$), и составляет для кремния $\sim 1,5 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$ при плотности энергии $1,5 \text{ Дж/см}^2$ и длительности импульса 80 нс . В этом случае можно записать

$$k_1 = Akq \left(1 - \frac{q_0}{q} \right), \quad \text{где} \quad A = \frac{\left| \frac{d\sigma}{dT} \right|}{2\rho gh \sqrt{2\rho ck C_1 h}} \quad (6)$$

Окончательно выражение для коэффициента теплопроводности в расплаве при наносекундном лазерном нагреве запишется в виде

$$k_{eff} = k \left(1 + Aq \left(1 - \frac{h T_i - T_m}{h_i T - T_m} \right) \right), \quad (7)$$

где T_m — температура плавления, T_i и h_i — пороговые значения температуры и толщины слоя расплава, при которых возникает конвективный перенос тепла.

Численное моделирование динамики фазовых превращений в кремнии, инициируемых наносекундным лазерным излучением, проводилось на основе одномерного уравнения теплопроводности с учетом кинетики зарождения и роста новой фазы [7]:

$$\rho c(T) \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left[k_{eff}(x, T) \frac{\partial T}{\partial x} \right] + S(x, T) - \rho L \left(\frac{\partial \varphi}{\partial x} - \frac{\partial \varphi}{\partial t} \right), \quad (8)$$

с граничными и начальными условиями

$$\left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{x=0} = 0, \quad T(x \rightarrow \infty, t) = T_0, \quad T(x, t=0) = T_0 \quad (9)$$

где L – скрытая теплота фазового перехода, T_0 – начальная температура. Тепловой источник $S(x, t)$ в (1) описывает выделение тепла за счет поглощения лазерного излучения

$$S(x, t) = (1 - R)\alpha(x, T) \frac{W(t)}{T} \exp\left[-\int_0^x \alpha(x, T) dx\right], \quad (10)$$

где R и $\alpha(x, T)$ – коэффициенты отражения и поглощения

Последние два члена в правой части уравнения (8) описывают мощность тепловых стоков и источников при плавлении и кристаллизации полупроводника. Здесь $\phi(x, t)$ – доля расплава, образовавшегося в точке x к моменту времени t после начала плавления, $\psi(x, t)$ – доля закристаллизовавшегося расплава в точке x к моменту времени t после начала кристаллизации. В рамках теории фазовых переходов доля образовавшейся новой фазы выражается через частоту зародышеобразования $J(t)$ и скорость роста $V(t)$ [8, 9]:

$$\phi(x, t) = 1 - \exp\left\{-\beta \int_{t_1}^t J(\tau) \left[\int_{t_1}^{\tau} V(t) dt\right]^2 d\tau\right\}, \quad (11)$$

где t_1 – время начала зародышеобразования в точке x , β – константа формы. Функция $J(t)$ для случая двумерного зародышеобразования имеет вид [8, 9]:

$$J(t) = N \frac{kT}{h} \exp\left(-\frac{U}{kT}\right) \exp\left(-\frac{\pi d_a \sigma^2 T_m}{L^* kT \Delta T}\right), \quad (12)$$

где N – число атомов на границе раздела на 1 см^2 , U – энергия активации перехода атома через границу раздела фаз, d_a – межатомное расстояние (высота монослоя), L^* – теплота плавления на один атом, σ – поверхностная энергия границы раздела фаз, $\Delta T = T - T_m$ при плавлении и $\Delta T = T_m - T$ при кристаллизации. Для скорости роста использовалось выражение [10]

$$V(t) = d_s \frac{kT}{h} \exp\left(-\frac{U}{kT}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{L^* \Delta T}{kT_m T}\right)\right]. \quad (13)$$

В двухфазной (переходной) зоне, состоящей из расплава и кристалла полупроводника, параметры определялись следующим образом [7].

$$A(x, t) = \varphi(x, t)A_l(x, t) + [1 - \varphi(x, t)]A_s(x, t), \quad (14)$$

где индексы l и s относятся к жидкой и кристаллической фазам соответственно.

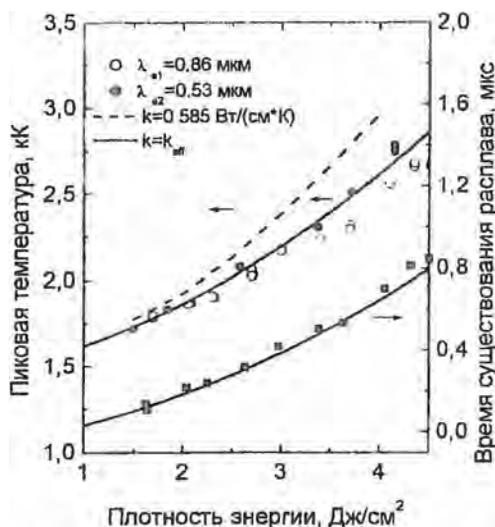


Рис. 1. Расчетные и экспериментальные зависимости пиковой температуры и времени существования жидкой фазы кремния от плотности энергии лазерного импульса. Точками обозначены экспериментальные значения T_p и τ .

Уравнение (8) совместно с (9)-(14) решалось численно методом прогонки. Форма лазерного импульса задавалась функцией $\sin^2(\pi t/2\tau_p)$ с $\tau_p = 80$ нс. Значения параметров кремния, используемых при решении задачи, приведены в табл. 1.

Результаты расчета хорошо согласуются (рис. 1) с экспериментальными данными [1] при $A = 0,2 \cdot 10^{-7} \text{ см}^2/\text{Вт}$ и $(T_l - T_m)/h_l = 2 \cdot 10^5 \text{ К/см}$. Расчетная зависимость $T_p(W)$ аппроксимируется следующим выражением

$$\tau = a + bW + cW^2 \quad (15)$$

где $a = 1402,5$ К, $b = 113,7$ см²К/(Дж) и $c = 13,8$ см⁴К/(Дж²)

Таблица 1

Значения параметров кремния и германия		
Параметры	Кристалл Si	Расплав Si
ρ , г/см ³	2,328 [11]	$2,53 \cdot 10^{-3} (T - T_m)$ [11]
T_m , К	1683	
c , Дж/г·К	$0,844 + 1,18 \cdot 10^{-4} T - 1,55 \cdot 10^{-4} T^2$ [11]	1,04
L , Дж/г	1787 [11]	
k , Вт/см·К	$\frac{1521}{T^{1,22}}$, $T < 1200$ К [12] $8,97$, $T > 1200$ К	0,585 [11]
n	0,35	0,72
α , см ⁻¹	$1578 \exp(77493/T)$ [13]	10^6 [12]
U , эВ	0,42 [14]	
σ , эрг/см ²	210	

Аналогичная зависимость для времени существования расплава записывается в виде

$$\tau = a_1 + b_1W + c_1W^2 \quad (16)$$

где $a_1 = -63$ с, $b_1 = 67,6$ см²с/Дж, и $c_1 = 27,3$ см⁴с/Дж².

В отношении представленных экспериментальных данных о температуре $T_p(W)$, отметим, что они получены из пиromетрических измерений на эффективных длинах волн $\lambda_{e1} = 0,86$ и $\lambda_{e2} = 0,53$ мкм. Время $\tau(W)$ определялось в эксперименте по данным о динамике отражения зондирующего излучения от зоны лазерного воздействия.

Таким образом, в работе проведен анализ различия между результатами численного моделирования и экспериментальными данными по пиковой температуре поверхности кремния при плотностях энергии W наносекундного лазерного облучения выше порога плавления полупроводника W_m , когда указанная температура значительно превышает равновесную точку фазового перехода. На основе гипотезы о существенном повышении эффективности переноса тепла к фронту плавления за счет развития термокапиллярных волн в расплаве сформулировано выражение для эффективного коэффициента переноса тепла. Численное моделирование лазерно-индуцированных фазовых переходов,

проведенное на основе разработанной ранее модели с учетом эффективного коэффициента теплопереноса, дает хорошее согласие с экспериментом как по пиковой температуре, так и по длительности существования расплава в зависимости от $W > W_m$.

Работа выполнена при поддержке БРФФИ по проекту Ф99-184

Литература

1. *Ivlev G.D., Gatskevich E.I., Sharaev D.N.* Time-resolved temperature and reflectivity measurements at nanosecond laser-induced melting and crystallization of silicon // Proc. SPIE. 2001. Vol. 4157 P 78-81
2. Воздействие мощного лазерного излучения на поверхность полупроводников и металлов: нелинейно-оптические эффекты и нелинейно-оптическая диагностика / С.А. Ахманов, В.И. Емельянов, Н.И. Коротеев, В.Н. Семиногов // УФН. 1985. Т. 147, № 4. С. 675-745
3. *Анисимов С.И., Трибельский М.И., Эпельбаум Я.Г.* Неустойчивость плоского фронта испарения при взаимодействии лазерного излучения с веществом // ЖЭТФ. 1980. Т. 78, № 4. С. 1597-1605.
4. *Левченко Е.Б., Черняков А.Л.* Неустойчивость поверхностных волн в неоднородно нагретой жидкости // ЖЭТФ. 1981. Т. 81, № 1 С. 202-209.
5. *Tokarev V.N., Konov V.I.* Suppression of thermocapillary waves in laser melting of metals and semiconductors // J Appl Phys. 1994. Vol. 76, № 2 P 800-805
6. *Эйдельман Е.Д.* Возбуждение электрической неустойчивости нагреванием // УФН. 1995. Т. 165, № 11 С. 1279-1294.
7. *Жвавый С.П.* Моделирование процессов плавления и кристаллизации монокристаллического кремния при воздействии наносекундного лазерного излучения // ЖТФ. 2000 Т. 70, № 8. С. 58-62
8. *Александров Л.Н.* Кинетика кристаллизации и перекристаллизации полупроводниковых пленок Новосибирск: Наука. 1985. 224 с
9. *Безельский В.З.* Геометрико-вероятностные модели кристаллизации. М.: Наука. 1989. 88 с.
10. *Скрипов В.П., Коверда В.П.* Спонтанная кристаллизация переохлажденных жидкостей. М.: Наука. 1984. 232 с.
11. *Регель А.Р., Глазов В.М.* Физические свойства электронных расплавов. М. Наука. 1980. 296 с.
12. *Bell A.E.* Review and analysis of laser annealing. // RCA Review. 1979. Vol. 40, № 3. P. 295-338.
13. Time resolved reflectivity and melting depth measurements using pulsed ruby laser on silicon / M. Toulemonde, S. Unamuno, R. Heddache et al // Appl. Phys A. 1985. Vol. 36, № 1. P. 31-36.
14. *Peter M.R.* Interface kinetics of freezing and melting with density change // Phys Rev. B. 1988. Vol. 38, № 4 P 2727-2739.