

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ПЛАВЛЕНИЯ И КРИСТАЛЛИЗАЦИИ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО КРЕМНИЯ И ГЕРМАНИЯ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ НАНОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

С.П.Жвавий

Институт электроники НАНБ, 220090 Минск, Логойский тракт 22,
Тел. (+375 17) 265 35 14

В предположении послойного роста новой фазы проведено численное моделирование процессов плавления и кристаллизации Si и Ge при моноимпульсном воздействии излучения рубинового лазера. Для описания фазовых переходов привлекался двухмерный механизм зародышеобразования и роста новой фазы. Показано, что временные зависимости перегрева кристалла, переохлаждения расплава и скорость движения границы раздела фаз носят немонотонный характер и определяются кинетикой фазовых превращений.

Введение

Процессы плавления и кристаллизации монокристаллического кремния и германия инициируемые наносекундными лазерными импульсами исследовались во многих работах (см., например, [1-4]). Как правило, для выяснения основных закономерностей лазерного воздействия на полупроводники решалась задача Стефана. Такой подход оправдан при слабой неравновесности протекающих процессов. Однако как следует из экспериментальных работ [5-7] при облучении поверхности полупроводника лазерными импульсами нано- и пикосекундной длительности фазовые переходы протекают в условиях сильной неравновесности. В [8,9] моделирование лазерного отжига аморфизированных слоев кремния с учетом неравновесного характера протекающих процессов основано на рассмотрении фазового состояния ячейки облучаемого образца в зависимости от энтальпии и времени ожидания появления зародыша новой фазы. Другой подход [10] основан на решении задачи Стефана с привлечением нелинейной зависимости скорости движения границы раздела фаз от температуры. Однако в этих работах практически не затрагиваются вопросы кинетики формирования новой фазы.

Основная часть

В настоящей работе представлена модель плавления и кристаллизации монокристаллического кремния и германия при воздействии на их поверхность наносекундного излучения рубинового лазера, учитывающая кинетику фазовых переходов на основе уравнения Колмогорова [11-13]. Аналогичный подход был нами ранее использован при численном моделировании лазерного отжига аморфизированного кремния [14,15], где процесс кристаллизации сильно переохлажденного расплава определялся трехмерным механизмом роста готовых зародышей. Здесь же предполагается, что как плавление, так и кристаллизация происходят в результате гомогенного зародышеобразования по двухмерному механизму роста [11,12,16-18].

Изменение температуры полупроводника при воздействии на его поверхность наносекундного лазерного излучения описывалось на основе одномерного уравнения теплопроводности

$$\rho c(T) \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} [k(x, T) \frac{\partial T}{\partial x}] + S(x, T) - \rho L \left(\frac{\partial \varphi}{\partial t} - \frac{\partial \psi}{\partial t} \right), \quad (1)$$

с граничными и начальными условиями

$$\left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{x=0} = 0, \quad T(x \rightarrow \infty, t) = T_0, \quad T(x, t=0) = T_0. \quad (2)$$

где ρ - плотность, $c(T)$ - удельная теплоемкость, $k(x, T)$ - коэффициент теплопроводности, L - скрытая теплота фазового перехода, T_0 - начальная температура. Тепловой источник $S(x, t)$ в (1) описывает выделение тепла за счет поглощения лазерного излучения

$$S(x, t) = (1 - R) \alpha(x, T) \frac{W(t)}{\tau_p} \exp \left[- \int_0^x \alpha(x', T) dx' \right], \quad (3)$$

где R и $\alpha(x, T)$ - коэффициенты отражения и поглощения, W и τ_p - плотность энергии и длительность лазерного импульса.

Последние два члена в правой части уравнения (1) описывают мощность тепловых стоков и источников при плавлении и кристаллизации полупроводника. Здесь $\varphi(x, t)$ - 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 $V(t)$ [11,12]:

$$\varphi(x, t) = 1 - \exp \left\{ - \beta \int_{t_1}^t J(\tau) \left[\int_{\tau}^t v(t') dt' \right]^n d\tau \right\}, \quad (4)$$

где t_1 - время начала зародышеобразования в точке x , β - константа формы.

Источником роста слоев на сингулярной поверхности бездислокационного кристалла являются двумерные зародыши. Функция $J(t)$ в этом случае имеет вид [11,12]:

$$J(t) = N \frac{kT}{h} \exp\left(-\frac{U}{kT}\right) \exp\left(-\frac{\pi a \sigma^2 T_m}{L k T \Delta T}\right), \quad (5)$$

где N – число атомов на границе раздела 1 см², U – энергия активации перехода атома через границу раздела фаз, 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.

В моделях послойного роста нормальный рост кристалла происходит за счет наращивания последовательных слоев. Связь между слоями определяется требованием, что центры кристаллизации очередного k -го слоя могут возникать лишь на закристаллизовавшихся участках предыдущего $(k+1)$ -го слоя, т.о. структура поверхности кристалла имеет пирамидальный характер. Поскольку условия зацепления охватывают в явном виде только два последовательных слоя то для описания процесса в данном слое достаточно знать лишь развитие процесса в предыдущем слое. Таким образом, вводя функцию $\gamma = \gamma(x, t)$ [12]

$$\gamma(x, t) = \psi(x + a, t) - \psi(x, t) \quad (6)$$

в уравнение (4), учитывающую закристаллизовавшуюся долю предыдущего слоя на которой могут возникать центры кристаллизации очередного слоя; можно описать процесс послойного роста при кристаллизации полупроводника. В случае плавления предполагается, что зародыши жидкой фазы могут возникать только на кристаллических участках и, следовательно, в этом случае $\gamma = 1 - \Phi_0(x, t)$.

Для скорости роста использовалось выражение [13]

$$V(t) = a \frac{kT}{h} \exp\left(-\frac{U}{kT}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{L^* \Delta T}{k T_m T}\right)\right]. \quad (7)$$

В двухфазной (переходной) зоне, состоящей из расплава и кристалла полупроводника, параметры определялись следующим образом [14]:

$$A(x, t) = \varphi(x, t) a_l(x, t) + [1 - \varphi(x, t)] a_s(x, t), \quad (8)$$

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

Уравнение (1) совместно с (2)-(8) решалось численно методом прогонки. Форма лазерного импульса задавалась функцией $\text{Sin}^2(\pi t/2\tau_1)$ с $\tau_1 = 70$ нс.

На рис.1 показаны временные зависимости температуры поверхности кремния и германия при плотности энергии облучения $W = 2$ и 1 Дж/см² соответственно. Как следует из расчетов, к моменту начала плавления величина перегрева монокристалла достигает значений $\Delta T \approx 35$ К для кремния и $\Delta T \approx 45$ К для германия. За время $\Delta t < 1$ нс в приповерхностном слое возникают зародыши жидкой фазы, которые при данных перегревах начинают расти с высокой скоростью (рис.2).

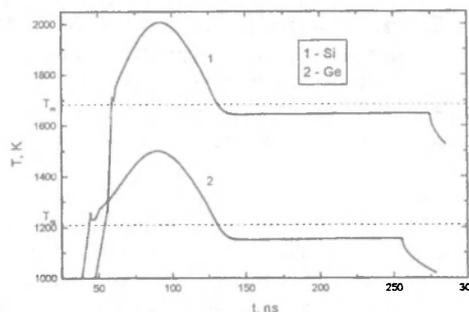


Рис.1.

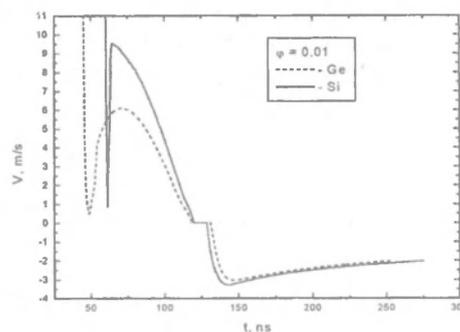


Рис.2

Поглощение скрытой теплоты фазового перехода при возникновении зародышей расплава и их роста приводит к уменьшению перегрева на переднем фронте двухфазной зоны, охлаждению прилегающих кристаллических областей и существенному замедлению скорости распространения переднего фронта до $V \approx 2$ м/с (рис.2).

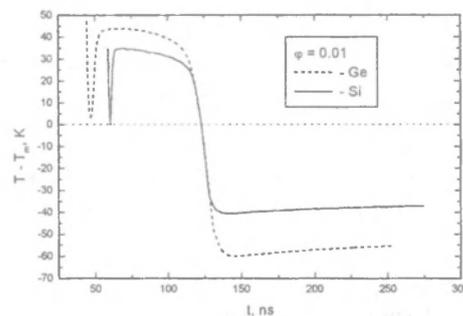


Рис.3.

Для определения положения задней границы двухфазной (переходной) зоны было использовано условие [18], что процесс плавления (кристаллизации) считается завершившимся, если $\varphi = 0,99$ ($\psi = 0,99$). Положение переднего фронта находилось из условия $\varphi = 0,01$ ($\psi = 0,01$). При медленно продвигающейся передней границе вглубь образца на поверхности происходит увеличение доли расплава и формирование задней границы

переходной зоны, т.е. сплошного слоя жидкой фазы. Таким образом, на начальном этапе плавления за время $\Delta t < 2$ нс для кремния и $\Delta t < 4$ нс для германия на поверхности образуется слой расплава толщиной $\Delta x \approx 0,04$ мкм (Si) и $0,03$ мкм (Ge) с достаточно узкой переходной зоной $\Delta x \approx 0,01$ мкм.

Дальнейший нагрев кремния лазерным излучением приводит вновь к увеличению перегрева (Рис.3) и скорости движения переднего фронта, которые достигают на данном этапе своих максимальных значений. Так $\Delta T \approx 35$ К и $V \approx 9,5$ м/с для кремния и $\Delta T \approx 45$ К и $V \approx 6$ м/с для германия. На заднем фронте перегрев несколько больше ($\Delta T \approx 45$ К для кремния и $\Delta T \approx 55$ К для германия), а скорость движения фронта $V|_{\rho=0,99}$ сравнивается с $V|_{\rho=0,01}$ и остается равной ей до конца процесса плавления. По мере продвижения расплава вглубь образца и уменьшения поступления световой энергии происходит постепенное снижение перегрева и скорости распространения, а к моменту окончания воздействия лазерного излучения продвижение расплава вглубь полупроводника прекращается и двухфазная зона остается неподвижной в течение $\Delta t \approx 10$ нс (рис.2). За это время в результате отвода тепла в объем образца, который уже не компенсируется лазерным излучением, перегрев полностью снимается и расплав переохлаждается в районе переходной зоны до $\Delta T \approx 40$ К (Si) и $\Delta T \approx 60$ К (Ge). С возникновением переохлаждения начинается формирование и рост зародышей кристаллической фазы. Ширина переходной области при кристаллизации составляет $\Delta x \approx 0,01$ мкм как для кремния так и для германия, что объясняется условием (6), существенным образом ограничивающее скорость зародышеобразования на предыдущих слоях. Скорость перемещения двухфазной зоны на начальном этапе кристаллизации достигает значений ≈ 3 м/с. К этому времени ($t \approx 145$ нс) в жидкой фазе происходит выравнивание температурного градиента и весь расплавленный слой оказывается переохлажденным на ≈ 40 К. Дальнейший процесс кристаллизации приводит к небольшому увеличению температуры в жидком слое (на 3 К) и уменьшению скорости движения границ раздела фаз до 2 м/с.

Заключение

Таким образом, при послойном механизме роста новой фазы в условиях наносекундного лазерного нагрева

монокристаллического полупроводника максимальные значения перегрева и переохлаждения достигаются на начальных стадиях плавления и кристаллизации соответственно и равны $\Delta T \approx 40$ К для кремния и $\Delta T \approx 60$ К для германия. Максимальная скорость движения двухфазной зоны при плавлении составляет $\sim 9,5$ м/с (Si) и ~ 6 м/с (Ge). При кристаллизации скорость движения границ раздела фаз на начальном этапе достигает ~ 3 м/с и уменьшается до ~ 2 м/с к концу процесса кристаллизации.

Работа выполнялась при поддержке БРФФИ по проекту Ф99-184

Список литературы

1. Wood R.F., Giles G.E. // Phys. Rev. B. -1981. -V.23.- №6.- P.2923.
2. Lowndes D.H., Wood R.F., Narayan J. // Phys. Rev. Lett. -1984. -V.52.- P.561.
3. Пилипович В.А., Малевич В.Л., Иалев Г.Д., Жидков В.В. // ИФЖ. -1985.-Т.48. -№2.-С.306.
4. Gusakov G.M., Komarnitskii A.A., Em A.S. // Phys. St. Sol. (a). -1988. -V.107. -P.261.
5. Jellison G.E.(Jr.), Lowndes D.H., Mashburn D.N., Wood R.F. // Phys. Rev. B. -1986. -V.34. -№4. -P.2407.
6. Аверьянова М.Ю., Карпов С.Ю., Ковальчук Ю.В. и др. // Письма в ЖТФ. 1986. -Т.12.- Вып.18.- С.1119.
7. Cullis A.G., Weber H.C., Chew N.G. et al. // Phys. Rev. Lett. -1982. -V.49.- P.219.
8. Wood R.F., Geist G.A. // Phys. Rev. B. -1986.-V.34. - №4.- P.2606.
9. Баландин В.Ю., Двуреченский А.В., Александров Л.Н. // Поверхность. Физика, химия, механика. -1986.-№ 1.- С. 53.
10. Černý R., Šašík R., Lukeš I., Chab V. // Phys. Rev. B. -1991. -V.44. -№9. -P.4097.
11. Александров Л.Н. Кинетика кристаллизации и перекристаллизации полупроводниковых пленок.- Новосибирск: Наука, 1985. -224с.
12. Бельский В.З. Геометрико-вероятностные модели кристаллизации. -М.: Наука, 1989. -88с.
13. Скрипов В.П., Коверда В.П. Спонтанная кристаллизация переохлажденных жидкостей.- М.: Наука, 1984. -232с.
14. Жвавий С.П. // ЖПС. -1989. -Т.50.-№ 4.-С.589.
15. Жвавий С.П., Садовская О.Л. // Поверхность. Физика, химия, механика. -1990. -№ 11. -С. 101.
16. Френкель Я.И. Кинетическая теория жидкостей. -Л.: Наука. 1975. -592с.
17. Фольмер М. Кинетика образования новой фазы. - М.: Наука. 1986. -208с.
18. Александров Л.Н. Кинетика образования и структуры твердых слоев. -Новосибирск: наука. 1972. -227с.

SIMULATION OF MELTING AND CRYSTALLIZATION PROCESSES INDUCED IN MONOCRYSTALLINE GE AND SI BY RUBY LASER NANOSECOND IRRADIATION

S.P.Zhvavyi

Institute of Electronics, BNAS, 22 Logoiskii Trakt, 220090 Minsk, (+375 17) 265 35 14, fax (+375 17) 265 25 41

Numerical simulation of melting and crystallization processes induced in Ge and Si by ruby laser nanosecond irradiation have been carried out on the assumption of the layer-by layer growth of new phase. The two-dimension mechanism of the nucleation and the growth of new phase is used for the description of the phase transitions. It is shown that the time dependence's of the crystal overheating, the melt undercooling and liquid-solid interface velocity are nonmonotone and be determined by the phase transitions kinetics