

Отражательная способность жидкой фазы в условиях лазерно-индуцированного плавления кремния

© Г.Д. Ивлев[¶], Е.И. Гацкевич

Институт электроники Национальная академия наук Белоруссии,
220090 Минск, Белоруссия

(Получена 24 января 2000 г. Принята к печати 27 января 2000 г.)

Исследована динамика отражательной способности жидкой фазы кремния на длине волны 0,63 мкм в условиях моноимпульсного нагрева поверхности полупроводника ультрафиолетовым излучением ArF эксимерного лазера. Установлена зависимость коэффициента отражения в момент наибольшего нагрева поверхности от плотности энергии в лазерном импульсе. Показано, что температурное снижение отражательной способности расплава наиболее выражено при нагреве поверхности значительно выше равновесной точки кипения кремния. Возможный перегрев жидкой фазы вблизи энергетического порога абляции составляет около 1500 К.

Лазерно-индуцированное плавление кремния сопровождается, как известно, примерно двукратным возрастанием его отражательной способности R , динамика которой исследуется путем оптического зондирования облучаемой поверхности чаще всего на длине волны $\lambda = 0,63$ мкм [1,2]. Такое увеличение R обусловлено фазовым переходом типа полупроводниковый кристалл–жидкий металл [3]. Фронт фазового перехода, инициируемого наносекундным лазерным нагревом Si при плотностях энергии облучения W ниже порога абляции W_a , проникает в монокристалл на глубину до 1 мкм. На стадии плавления пиковая температура T_p поверхности жидкой фазы может значительно превышать [4] равновесную точку $T_m = 1685$ К фазового перехода кристалл–расплав. Возникающий при этом в расплавленном слое температурный градиент достигает порядка 10^7 К/м, т. е. термодинамическое состояние жидкой фазы существенно отличается от равновесного.

Как при лазерном нагреве, так и в условиях квазистатического повышения температуры T расплавленного кремния (равновесное состояние расплава), его отражательная способность R_m должна уменьшаться из-за возрастания частоты электрон-фононных соударений в скин-слое и, как следствие, изменения комплексного показателя преломления $\tilde{n} = n + i\kappa = f(\lambda, T)$. При варьировании температуры равновесного расплава Si от T_m до величины на 200 К выше точки плавления спектральная зависимость $\tilde{n}(\lambda)$ в интервале длин волн $0,4 \div 1$ мкм практически не изменялась [5]. Вместе с тем зависимость $R_m(T)$ на $\lambda = 0,63$ мкм позже установлена в эксперименте [6], где расплав Si нагревался до $T = 1950$ К. Уменьшение R_m составляло 0,02% на каждый градус нагрева. Экспериментальные данные об оптических параметрах равновесного расплава Si при $T \geq 2000$ К в литературе отсутствуют.

Поведение R_m в условиях наносекундного лазерного нагрева жидкой фазы Si изучалось в весьма ограниченном числе работ [1,2,4], посвященных именно этому аспекту лазерного воздействия. Эксперименты [1,2]

проводились по двухимпульсной методике нагрева Si основной или второй гармониками излучения Nd:YAG лазеров. Первым импульсом при небольшом превышении W_1 над порогом плавления Si W_m инициировалось образование жидкой фазы, которая через короткое время Δt подвергалась воздействию второго импульса с варьируемой плотностью энергии W_2 . По мнению авторов [2], достоинство такой постановки эксперимента заключается в том, что воздействие второго импульса, нагревающего поверхность расплава, можно проанализировать более детально в сравнении с ситуацией моноимпульсного облучения.

Согласно [1], оптические параметры расплава \tilde{n} и R_m на $\lambda = 0,63$ мкм во время действия второго импульса не менялись, хотя при максимальной в эксперименте величине W_2 расчетная температура T_p приближалась к равновесной точке кипения Si $T_b = 2900$ К. Вместе с тем в аналогичном эксперименте [2] обратимое изменение R_m на той же длине волны было четко выражено даже при температурах ниже T_b (но ≥ 2000 К), найденных на основе измерений $R_m(W_2)$ с использованием модели Друде. Позже методами оптической пирометрии и измерений R_m на $\lambda = 1,06$ мкм было установлено [4], что температурное уменьшение коэффициента отражения в условиях моноимпульсного воздействия излучения рубинового лазера хорошо заметно только при перегреве жидкой фазы, т. е. при $T_p > T_b$.

Отмеченные противоречия, а также имеющийся дефицит знаний об оптических свойствах расплава кремния в области высоких температур стимулируют постановку новых экспериментов. Цель данной работы — исследование динамики отражательной способности жидкой фазы при плавлении Si под действием моноимпульсного ультрафиолетового излучения эксимерного лазера.

Пластины кремния КДБ-10 с ориентацией поверхности (111), полированной механически и химически, облучались в экспериментальных условиях [7] излучением ArF эксимерного лазера EMG 100 с длиной волны 0,19 мкм при длительности импульса по полувывсоте $\tau = 10 - 12$ нс. Зондирующий пучок гелий-неонового лазера ($\lambda = 0,63$ мкм) p -поляризации фокусировался в пятно ~ 50 мкм в центр зоны облучения при угле

[¶] Факс: (37517) 2652541

E-mail: ivlev@inel.bas-net.by

падения 30° . Отраженный от образца поток зондирующего излучения детектировался кремниевым фотодиодом с временем нарастания переходной характеристики 1 нс. Выходной сигнал с фотодиода, снабженного интерференционным фильтром на $\lambda = 0.63$ мкм, подавался на вход запоминающего осциллографа TS 8123 с полосой пропускания 100 МГц (время нарастания 3.5 нс).

Согласно полученным данным, возрастание R , связанное с плавлением Si, наблюдается при $W > 0.6$ Дж/см² (рис. 1). Увеличение плотности энергии до 0.75 Дж/см² приводит к повышению R до величины R_m , определяемой оптическими параметрами расплава. В интервале изменения W от 0.8 до 1.3–1.4 Дж/см² коэффициент отражения зондирующего излучения от жидкой фазы не меняется, т.е. достигнув максимума, остается постоянным до окончания процесса эпитаксиальной кристаллизации. При плотностях $W \geq 1.5$ Дж/см² наблюдается обратимое изменение R_m во время действия лазерного импульса, связанное с нагревом поверхности расплава. Коэффициент отражения вначале возрастает до максимума, затем уменьшается на некоторую величину ΔR , после чего вновь увеличивается из-за остывания жидкой фазы, температура которой на стадии кристаллизации на десятки градусов ниже T_m [8]. Величина ΔR значительно возрастает при увеличении W до 2.2 Дж/см² ($W_a = 2.3 - 2.4$ Дж/см²) из-за достижения более высокой пиковой температуры поверхности.

При $T = 300$ К монокристалл кремния с механически и химически полированной поверхностью характеризуется на $\lambda = 0.63$ мкм показателем преломления $\tilde{n} = 3.88 + 0.02i$ [9]. Этим значениям n и κ для p -поляризации пучка и угла падения 30° соответствует коэффициент отражения $R_c = 29.7\%$ [10]. По результатам измерений $R_m = 2.2R_c$, т.е. величина R_m получается немногим более 65%, что хорошо согласуется с данными эксперимента [2], в котором угол падения, поляризация и длина волны были такими же, но нагрев Si достигался воздействием двух лазерных импульсов равной длительности (7 нс) с длиной волны излучения 0.53 мкм ($\Delta t = 28$ нс). Установленная нами зависимость коэффициента отражения в момент достижения его минимума от плотности энергии в лазерном импульсе (рис. 2) подобна аналогичной зависимости $R_m(W_2)$, полученной в исследовании [2]. При энергиях облучения, близких к порогам разрушения поверхности кремния, величина R_m к моменту наибольшего нагрева жидкой фазы уменьшается на 8% и почти на 10% в условиях эксперимента [2], где, судя по всему, пороговое значение $W_2 = W_a$ составляло ~ 2 Дж/см².

При нагреве поверхности Si моноимпульсным излучением рубинового лазера [4] ($\tau = 80$ нс) относительно слабое обратимое изменение отражения от расплава зондирующего пучка p -поляризации ($\lambda = 1.06$ мкм), направляемого на образец под углом 45° , наблюдалось лишь в условиях нагрева поверхности на несколько сот градусов выше T_b ($W_a = 6.4$ Дж/см²). Так, согласно результатам пирометрических измерений $T_p = 3400$ К

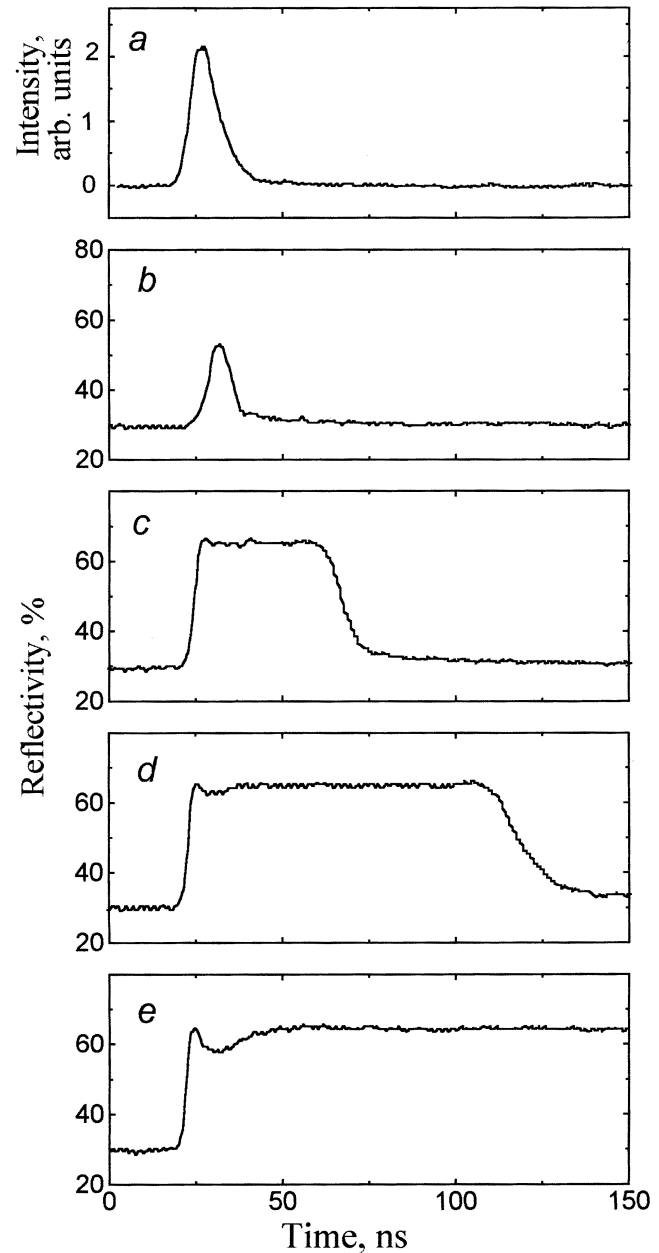


Рис. 1. Форма лазерного импульса (а), воздействующего на кремний, и временные зависимости коэффициента отражения R_m на $\lambda = 0.63$ мкм при плотностях энергии 0,64 (b), 1,3 (c), 1,5 (d) и 2,2 (e) Дж/см².

при $W = 5.8$ Дж/см² (перегрев ~ 500 К). При этом ΔR составляло всего 2.5%. Оно было бы больше на $\lambda = 0.63$ мкм. В таком случае по нашей оценке величина ΔR была бы 3–3.5%, но это все же существенно меньше приведенных выше наибольших значений ΔR . По данным (рис. 2), относящимся к исследованию [2], величине $\Delta R = 3\%$ соответствует расчетная температура 3400 К. Она совпадает с указанным экспериментальным значением T_p . Однако плотность энергии $W_2 = 1.2$ Дж/см², при которой возможен такой нагрев поверхности расплава, еще довольно мала в сравнении с $W_a = 2$ Дж/см².

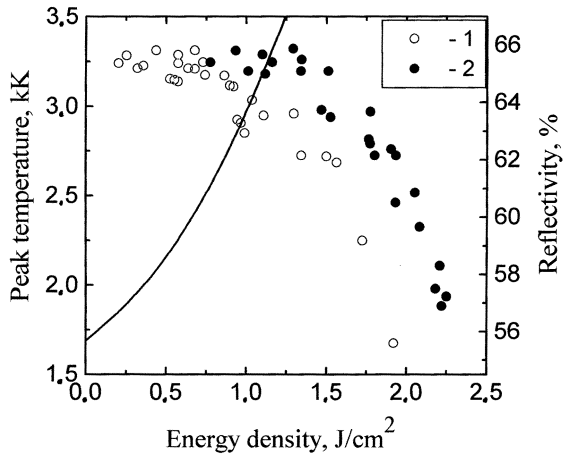


Рис. 2. Отражательная способность расплава кремния при достижении минимума R_m в зависимости от величин W_2 (1) и W (2). Расчетная кривая $T_p(W_2)$, полученная из решения уравнения теплопроводности, и экспериментальные точки 1 относятся к работе [2].

Последнее означает, что при плотностях энергии, близких к W_a , перегрев поверхности в экспериментальных условиях [2] значительно выше 500 К. Именно перегрев жидкой фазы приводит к четко выраженному падению его отражательной способности. Действительно, при расчетных температурах ниже 2600 К $\Delta R = 0$, в интервале изменения T_p от 2600 К до T_b величина ΔR равна всего 2% (рис. 2), тогда как при $W \rightarrow W_a$ ($T_p > T_b$) она приближается к 10%. Полагая, что ΔR возрастает пропорционально разности $T_p - T_b$ (3% на каждые 500 К), получаем, что возможная степень перегрева составляет приблизительно 1500 К. В равной мере это можно отнести и к нашей экспериментальной ситуации с моноимпульсным лазерным нагревом Si.

Воспользовавшись результатами пирометрических измерений [4], можно показать, что исследование [1] динамики оптических параметров кремния при двухимпульсном воздействии лазерного излучения не выявило какой-либо температурной зависимости \tilde{n} и R_m именно из-за того, что в эксперименте не достигался нагрев поверхности расплава хотя бы до 2900 К. При наибольшей величине $W_2 = 4$ Дж/см² во втором импульсе ($\tau_2 = 70$ нс, $\lambda_2 = 1.06$ мкм, $\Delta t = 20$ нс) и плотности энергии $W_1 = 0.8$ Дж/см² в первом ($\tau_1 = 50$ нс, $\lambda_1 = 0.53$ мкм) длительность комбинированного воздействия излучения была такой же, как величина $\tau = 80$ нс в эксперименте [4] с рубиновым лазером.

Суммарной плотности энергии $W' = W_1 + W_2 = 4.8$ Дж/см² соответствует $T_p = 2850$ К, что следует из эмпирической формулы $T_p = a + bW^2$ ($a = 1648$ К, $b = 52.3$ К · см⁴/Дж²), достаточно точно описывающей установленную в [4] зависимость $T_p(W)$ в интервале изменения $W = 1 \div 6$ Дж/см². Однако здесь необходимо учесть разницу в коэффициентах отражения лазерного излучения от расплава, т.е. неэквивалентность

экспериментальных ситуаций в энергетических балансах импульсного воздействия. Исходя из спектральной зависимости $\tilde{n}(\lambda)$ для жидкого Si [5] можно установить, что величина $R_m = 73\%$ на $\lambda = 0.53$ и 0.69 мкм и 76% на 1.06 мкм, т.е. поглощательная способность $1 - R_m$ на $\lambda = 1.06$ мкм (23%) на 4% меньше, чем на 0.69 мкм. Вводя соответствующую поправку в величину W_2 , которую нужно уменьшить на 15%, и определяя T_p для нового значения $W' = 4.2$ Дж/см², получаем, что достигаемая температура поверхности Si была меньше 2600 К, в связи с чем авторы [1] и не наблюдали каких-либо изменений в отражении зондирующего излучения от расплава.

В заключение отметим, что наблюдаемое уменьшение отражательной способности кремния в условиях импульсного лазерного нагрева тем выше, чем больше превышение температуры жидкой фазы над равновесной точкой кипения расплава. Сокращение длительности импульсного воздействия с $\sim 10^{-7}$ до 10^{-8} с позволяет увеличить в несколько раз возможную величину перегрева поверхности расплава из-за существенного повышения скорости роста температуры. Изменение оптических параметров расплава с переходом его в состояние метастабильной жидкости одинаково хорошо наблюдается как при двухимпульсном, так и при моноимпульсном лазерном нагреве поверхности Si излучением видимого и ультрафиолетового диапазонов. Температурная зависимость отражательной способности расплава в области термодинамической стабильности жидкого состояния начинает проявляться лишь при температурах, близких к равновесной точке кипения кремния.

Авторы выражают благодарность В. Хабу за предоставленную возможность проведения эксперимента с использованием эксимерного лазера.

Список литературы

- [1] G.M. Gusakov, A.A. Komarnitskii, A.S. Em. Phys. St. Sol. (a), **107**, 261 (1988).
- [2] J. Boneberg, O. Yavas, B. Mierswa, P. Leiderer. Phys. St. Sol. (b), **174**, 295 (1992).
- [3] А.Р. Регель, В.М. Глазов. *Физические свойства электронных расплавов* (М., Наука, 1980).
- [4] Г.Д. Ивлев, Е.И. Гацкевич. ФТП, **30**, 2097 (1996).
- [5] К.М. Шварев, Б.А. Баум, П.В. Гельд. ФГТ, **16**, 3246 (1974).
- [6] M.O. Lampert, J.M. Koebel, P. Siffert. J. Appl. Phys., **52**, 4975 (1981).
- [7] G. Ivlev, E. Gatskevich, V. Chab, J. Stuchlik, J. Kočka. Appl. Phys. Lett., **75**, 498 (1999).
- [8] G.D. Ivlev, E.I. Gatskevich. Appl. Surf. Sci., **143**, 265 (1999).
- [9] В.И. Гавриленко, А.М. Грехов, Д.Б. Карбушян, В.Г. Литовченко. *Оптические свойства полупроводников* (Київ, Наук. думка, 1987).
- [10] А.П. Пришивалко. *Отражение света от поглощающих сред* (Минск, Изд-во АН БССР, 1963).

Редактор В.В. Чалдышев

Liquid phase reflectivity during laser-induced melting of silicon

G.D. Ivlev, E.I. Gatskevich

Institute of Electronics,
National Academy of Sciences of Belarus,
220090 Minsk, Belarus

Abstract Time — resolved reflectivity of silicon liquid phase at the wavelength of $0.63 \mu\text{m}$ has been studied under the conditions of monopulse heating of the semiconductor surface by ArF excimer laser radiation. The reflectivity at the moment of maximum surface heating has been obtained depending on the laser irradiation energy density. The temperature decrease in the melt reflectivity is most pronounced under the heating of the liquid surface and relates to the equilibrium boiling point of silicon. The possible overheating of the liquid near the ablation energy threshold is about 1500 K.