

Кинетика оптического теплового пробоя тонкой полупроводниковой пленки

© Р.Д. Венгреневич, Ю.В. Гудыма

Черновицкий национальный университет,
58012 Черновцы, Украина

(Поступила в Редакцию 21 сентября 2000 г.
В окончательной редакции 28 ноября 2000 г.)

Кинетика различных стадий оптического теплового пробоя тонкой полупроводниковой пластины рассмотрена с единых позиций. По аналогии с распадом пересыщенного твердого раствора в пространстве размеров изучена эволюция радиуса зародыша новой фазы.

Исследование физических процессов лазерного разрушения является наиболее надежным путем решения практической задачи разработки технологических методов создания оптически стойких материалов. Действительно, разрушение прозрачных элементов квантовых генераторов света под действием собственного излучения ограничивает их граничную мощность. Явление оптического пробоя в прозрачных твердых материалах было выявлено в 1964 г. [1,2] после создания лазеров с гигантскими импульсами излучения. Наиболее высокие мощности с удовлетворительной монохроматичностью получают на CO₂-лазерах, которые работают в непрерывном режиме. Длина волны генерации этих лазеров (10.6 μm) лежит в относительно далекой инфракрасной области, где высокую прозрачность имеет германий.

Обратимый оптический тепловой пробой — пример нелинейного оптического эффекта в системах, возбуждаемых когерентным светом, отличительной особенностью которых является возникновение множественных стабильных состояний при превышении параметрами системы определенных критических значений при отсутствии внешней обратной связи [3]. Физическая природа явления связана с быстрым (экспоненциальным) ростом коэффициента поглощения света свободными носителями (энергия светового кванта немного меньше ширины запрещенной зоны) при разогреве полупроводника поглощенным излучением и проявляется в виде лавинообразного роста температуры полупроводника, когда интенсивность света (внешний параметр) превышает порог пробоя. Интерес к оптическому тепловому пробоям как примеру возникновения диссипативной структуры в открытой системе вдали от состояния термодинамического равновесия вызван тем, что он наблюдался экспериментально [4] и объяснен теоретически [5]. На основе модели этого явления продемонстрированы особенности гистерезиса в распределенных системах и показано существование волн переключения между состояниями, отвечающими различным ветвям гистерезисной зависимости. Таким образом, для оптического теплового пробоя были описаны почти все неравновесные эффекты, в том числе возникновения флуктуационных выбросов и их независимого роста [6,7]. В то же время поздние этапы оптического теплового пробоя не были описаны. Кроме

того, не был разработан единый подход ко всем стадиям неравновесного перехода. В настоящей работе с единых позиций рассмотрена кинетика стадий оптического теплового пробоя тонкой полупроводниковой пластины на основе дифференциального уравнения, моделирующего данное физическое явление.

1. Физическая модель и основные уравнения

Заметим, что описываемая система является весьма удобным объектом для экспериментального изучения, так как интенсивность падающего света — внешний параметр — можно легко изменять на опыте в значительных пределах. Будем считать падающее лазерное излучение поперечно-однородным. В этом случае уравнение теплового баланса для достаточно тонкой полупроводниковой пластины имеет вид [3]

$$cd \frac{\partial T}{\partial t} = \chi \left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} \right) + G \{ 1 - \exp(-\alpha(T)l) \} / l - H(T - T_0) / l, \quad (1)$$

где G — интенсивность широкого пучка падающего света, c — удельная теплоемкость полупроводникового материала, d — поверхностная плотность вещества, l — толщина пластины, H — коэффициент теплоотдачи, равный отношению удельной теплопроводности к удельной плотности материала, приходящемуся на единицу длины, T_0 — температура термостата, χ — поперечный коэффициент теплопроводности,

$$\alpha(T) = \alpha_0 \exp(-E_g/2kT) \quad (2)$$

— коэффициент поглощения света свободными носителями, E_g — ширины запрещенной зоны полупроводника. Зависимостью от температуры значения коэффициента поглощения при высоких температурах α_0 обычно пренебрегают.

От (1) нетрудно перейти к безразмерным переменным

$$\begin{aligned} \frac{\partial \theta}{\partial \tau} &= \frac{\partial^2 \theta}{\partial \rho^2} + \beta \{1 - \exp(-\eta \exp(\gamma - \gamma/\theta))\} - (\theta - 1) \\ &\equiv \frac{\partial^2 \theta}{\partial \rho^2} + f(\theta), \end{aligned} \quad (3)$$

где $\theta = T/T_0$, $\tau = tH/cdl$, $\rho = H^{1/2} \chi^{-1/2} l^{-1/2} r_{\perp}$, $\gamma = E_g/2kT_0$, $\eta = \alpha(T_0)l$, $\beta = GH^{-1}T_0^{-1}$.

2. Процесс зародышеобразования

В стационарном однородном случае уравнение (3) в зависимости от величины управляющего параметра β может иметь от одного до трех решений (рис. 1). В последнем случае система имеет два устойчивых стационарных однородных состояния, характеризующихся температурами θ_1 и θ_3 , и одно неустойчивое состояние с температурой θ_2 , находящееся между ними. Слева от θ_2 низкотемпературное состояние θ_1 является стабильным, а высокотемпературное состояние θ_3 — метастабильным; правее этого значения — наоборот. Поэтому с физической точки зрения каждому из устойчивых состояний можно сопоставить фазу. Каждая из фаз характеризуется соответствующим коэффициентом поглощения η .

Дальнейшее обсуждение удобно проводить, переписав исходное уравнение (3) в эквивалентной форме

$$\frac{\partial \theta}{\partial \tau} = -\frac{\delta \Phi[\theta]}{\delta \theta(\rho, \tau)}, \quad (4)$$

где

$$\Phi[\theta] = \int \left[\frac{1}{2} \left(\frac{\partial \theta}{\partial \rho} \right)^2 + F(\theta) \right] d\rho. \quad (5)$$

Согласно основным положениям термодинамики неравновесных процессов [8], скорость изменения параметра порядка пропорциональна сопряженной термодинамической силе при малом отклонении от равновесия. Уравнение (4) полностью аналогично этому положению. Такое сходство позволяет ввести понятия обобщенной свободной энергии $\Phi[\theta]$ и обобщенного скалярного параметра порядка θ [9]. В нашем случае плотность обобщенной свободной энергии $F[\theta]$ дается выражением

$$F(\theta) = - \int_{\theta_1}^{\theta} f(u) du. \quad (6)$$

Она может иметь один или два минимума (рис. 2). Состояния вещества, отвечающие каждому из этих двух минимумов, локально устойчивы и равновесны. При изменении внешнего параметра (интенсивности светового потока β) взаимное расположение минимумов на кривой меняется. Интенсивность светового потока β_c , при которой энергии в минимумах совпадают, отвечает точке фазового перехода. Таким образом, в некотором

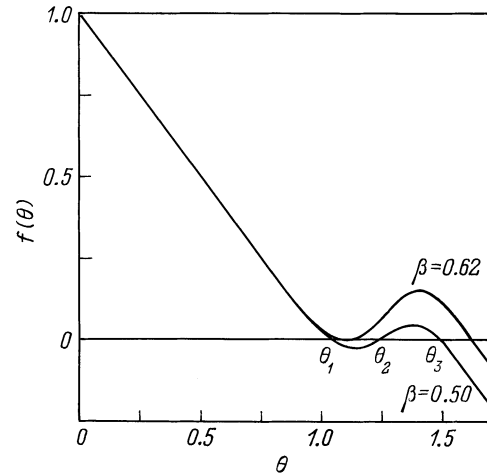


Рис. 1. Вид зависимости $f(\theta)$.

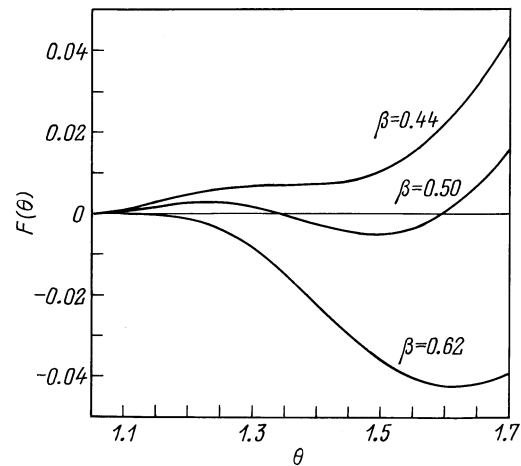


Рис. 2. Зависимость обобщенной плотности свободной энергии $F(\theta)$ для различных значений безразмерной интенсивности света β .

интервале интенсивностей светового потока β могут сосуществовать обе фазы: низко- и высокотемпературная. Та фаза, которой соответствует большая свободная энергия, является метастабильной.

Переход метастабильной фазы в устойчивую совершается путем флуктуационного возникновения в гомогенной среде небольших скоплениях новой фазы — зародышей. Вероятность возникновения состояния системы, включающего один зародыш, определяется минимальной работой, которую необходимо затратить для создания зародыша заданного размера на плоскости [10]

$$A_{\min} = \varphi S + \alpha P, \quad (7)$$

где $S = 4\pi R^2$ и $P = 2\pi R$ — площадь и периметр зародыша, φ — свободная энергия на единицу площади, α — энергия на единицу длины межзонной границы.

Для зародыша, находящегося в равновесии с окружающей его средой,

$$\left. \frac{dA_{\min}}{dR} \right|_{R_c} = 0, \quad (8)$$

отсюда

$$\varphi = -\frac{\alpha}{4R_c}. \quad (9)$$

С учетом (9)

$$A_{\min} = -\frac{\pi\alpha}{R_c}R^2 + 2\pi\alpha R. \quad (10)$$

Если не рассматривать перемещение зародыша как целого и считать его устойчивым по отношению к изменениям формы, то локальная равновесная функция распределения зародышей по размерам будет определяться максимумом функции $A_{\min}(R)$ как потенциальным барьером, препятствующим образованию критического зародыша,

$$f_0(R) = f_0(R_c) \exp \left\{ \frac{\pi\alpha}{DR_c} (R - R_c)^2 \right\}, \quad (11)$$

$$f_0(R_c) = C \exp \left\{ -\frac{\pi\alpha}{D} R_c \right\}, \quad (11a)$$

D — интенсивность шума среды.

Предэкспоненциальный множитель в $f_0(R_c)$, связанный с частотой перехода частиц из исходной фазы в новую, как известно, не может быть выражен через одни только макроскопические характеристики фаз [11]. Флуктуационное развитие зародышей в критической области размеров с шириной $\delta R \approx (DR_c/\pi\alpha)^{1/2}$ вокруг граничной точки $R = R_c$ может перебросить их обратно в докритическую область; зародыши же, прошедшие через критическую область, будут неудержимо развиваться в новую фазу. Термодинамический подход, однако, не может дать ответ на вопросы о ходе процессов, связанных с переходом в новое фазовое состояние. Действительно, теория зародышеобразования должна самостоятельно описывать процесс преодоления зародышами энергетического барьера и процесс изменения параметров барьера вследствие истощения метастабильной фазы. Здесь требуется кинетическое рассмотрение эволюции зародышей.

Прежде чем перейти к такому описанию, заметим, что из (11) также следует, что в метастабильной области при

$$\pi\alpha(R - R_c)^2/DR_c \gg 1 \quad (12)$$

флуктуации температуры не являются существенными [12] при описании термодинамики оптического теплового пробоя. Неравенству (12) можно придать форму известного критерия Гинзбурга–Леванюка применимости теории самосогласованного поля при описании фазового перехода

$$NGi = \frac{D}{\pi\alpha R_c (R/R_c - 1)^2} \ll 1 + O(\varepsilon). \quad (13)$$

Как видно из (13), нефлуктуационный подход правомерен в случае воздействия внешних шумов малой

интенсивности или стремлении R_c к нулю. Как будет видно из дальнейшего описания, последнее означает, что физические процессы разворачиваются в области существования в системе стоячих волн переключения (малых отклонений от метастабильности).

3. Процессы независимого роста выделений новой фазы

Найдем закон распространения кругового фронта, радиус R^1 которого велик по сравнению с шириной переходного слоя $\Delta\rho$. В полярной системе координат с учетом аксиальной симметрии уравнение (3) имеет вид

$$\frac{\partial\theta}{\partial\tau} = f(\theta) + \frac{1}{\rho} \frac{\partial\theta}{\partial\rho} + \frac{\partial^2\theta}{\partial\rho^2}. \quad (14)$$

Фактически производная $\partial\theta/\partial\rho$ отлична от нуля лишь в пределах узкого переходного слоя вблизи значения $\rho = R$. Поэтому во втором слагаемом справа в уравнении (14) можно приближенно положить $\rho = R$. Заметим, что на плоскости любой возникший зародыш новой фазы выпуклой формы стремится стать идеально круглым [13,14].

Пусть $V(R)$ есть мгновенная скорость распространения кругового фронта с радиусом R . С учетом сделанных выше приближений такой фронт отвечает автомодельному решению

$$\theta = \theta(\xi), \quad \xi = \rho - V(R)\tau \quad (15)$$

дифференциального уравнения

$$-V(R)\theta' = f(\theta) + R^{-1}\theta' + \theta'' \quad (16)$$

с граничными условиями

$$\theta \rightarrow \theta_1 \quad \text{при} \quad \xi \rightarrow +\infty,$$

$$\theta \rightarrow \theta_3 \quad \text{при} \quad \xi \rightarrow -\infty. \quad (17)$$

Обратим внимание на то, что уравнение (13) совпадает с уравнением для плоской волны переключения, движущейся со скоростью V , связанной со скоростью $V(R)$ распространения фронта с радиусом кривизны R соотношением

$$V(R) = V - R^{-1}. \quad (18)$$

С другой стороны, если умножить обе части уравнения (16) на производную $d\theta/d\xi$ и проинтегрировать по ξ в пределах от $-\infty$ до $+\infty$, то с учетом граничных условий

$$V = V(R) + R^{-1} \equiv A \left(\int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{d\theta}{d\xi} \right)^2 d\xi \right)^{-1}, \quad (19)$$

где $A = \int_{\theta_1}^{\theta_3} [\beta\{1 - \exp(-\eta \exp(\gamma - \gamma/\theta))\} / l - (\theta - 1)] d\theta$. Таким образом, уравнение (14) приводит к важному классу

¹ Здесь и далее под R подразумевается отнесенная к диффузионной длине $L \approx (\chi^2/cdH)^{1/2}$ безразмерная величина.

диссипативных структур — волнам переключения. При $\beta \rightarrow \beta_0$ величина A стремится к нулю, что соответствует стоячей волне переключения.

Если мы, по-прежнему рассматриваем неподвижный зародыш, то $V(R) = dR/d\tau$. Отсюда и из (18) следует, что

$$\frac{dR}{d\tau} = V - R^{-1}. \quad (20)$$

Уравнение (20) фактически означает, что мы предположили процессы на межфазной границе достаточно быстрыми, так что в каждой точке границы устанавливается локальное равновесие. Из условия стационарности границы контура фронта R следует

$$R_c = V^{-1} \equiv A^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{d\theta}{d\xi} \right)^2 d\xi, \quad (21)$$

откуда видно, что A имеет смысл степени пересыщения [15] метастабильной фазы бистабильной системы. Заметим также, что, вернув выражению (21) размерную форму и сравнив его с (9), можно установить формальную аналогию между физическими параметрами задачи и величинами, входящими в (9).

Из уравнения (20) с учетом (21) получим следующее соотношение:

$$\frac{dR}{d\tau} = \frac{1}{R_c} - \frac{1}{R}. \quad (22)$$

При $R < R_c$ $dR/d\tau < 0$, и плоские зародыши радиуса R растворяются в метастабильной среде; при $R > R_c$ $dR/d\tau > 0$ — плоские зародыши растут. Новообразования критического радиуса R_c , находящиеся в равновесии со средой, не растут и не растворяются.

На стадии независимого роста закритических зародышей их средний размер намного превосходит R_c . Кроме того, в начале стадии роста можно пренебречь падением пересыщения при определении скорости роста зародышей. Тогда для зависимости от времени радиуса зародышей, заметно превосходящих критический размер, из (22) получим

$$R(\tau) = R(0) + R_c^{-1}\tau. \quad (23)$$

Существенное отличие результата (23) от полученного в [16] объясняется тем, что в нашем случае кинетика роста зародышей определяется процессами присоединения и отрыва частиц на двумерной межфазной границе, а не диффузией в растворе.

4. Поведение ансамбля зародышей новой фазы на поздних стадиях оптического теплового пробоя

На поздних стадиях фазового перехода первого рода рост более крупных зародышей новой фазы осуществляется за счет растворения более мелких [17,18].

Для фотоиндуцированного фазового перехода созревание Оствальда начинается тогда, когда пересыщение A стремится к нулю. Последнее условие напоминает известное правило Максвелла, относящееся к возможности сосуществования в пространстве жидкой и газообразной фаз [8] и означающее в данном случае неподвижный фронт переключения между состояниями. Другими словами, в неравновесной системе возникает весьма развитая межфазная поверхность, с которой связывают стадию оствальдовского созревания [14]. Заметим, что на этой стадии флуктуационное возникновение новых зародышей практически исключено, поскольку критические размеры велики.

Уравнение (22), описывающее скорость роста капли обогащенной фазы, можно модифицировать к виду

$$\frac{dR}{d\tau} = \frac{1}{R} \left[\frac{R}{R_c} - 1 \right]. \quad (24)$$

Оно полностью аналогично выражению, описывающему контроль роста зародышей граничной кинетикой [18].

Следуя [19], определим максимально возможный размер R_g , до которого могут дорастать зародыши, из уравнения для удельной скорости роста (в форме предложенной в [20])

$$\left. \frac{d}{dR} \left(\frac{\dot{R}}{R} \right) \right|_{R=R_g} = 0. \quad (25)$$

Отсюда $R_g = 2R_c$. Используя (24), легко получить зависимость R_g от времени

$$R_g^2 - R_{g0}^2 = 2(\tau - \tau_0). \quad (26)$$

Уравнение (26) позволяет оценить на стадии оствальдовского созревания размеры образующихся при тепловом пробое зародышей. Действительно, последовательно возвращаясь от безразмерных переменных к размерным переменным, получим

$$R_g^2 - R_{g0}^2 = 2k(t - t_0),$$

где $k = \chi/c^2d^2$ — коэффициент температуропроводности, составляющий для кристаллов Ge $0.36 \text{ cm}^2/\text{s}$.

Рассматривая $dR/d\tau$ как скорость перемещения зародыша в пространстве размеров, запишем уравнение непрерывности в этом пространстве

$$\frac{\partial g}{\partial \tau} + \frac{\partial}{\partial R} \left(g \frac{\partial R}{\partial \tau} \right) = 0. \quad (27)$$

Функция распределения зародышей по размерам нормирована так, что

$$N(\tau) = \int_0^{\infty} g(\tau, R) dR \quad (28)$$

есть число зародышей в единице объема.

К уравнению (27) следует также добавить уравнение температурного баланса

$$\Delta\theta(\tau) + \pi\theta_3 \int_0^{\infty} R^2 g(\tau, R) dR = \Delta\theta_0, \quad (29)$$

где $\Delta\theta_0$ — разность между температурой перехода θ_2 и температурой среды θ_0 к началу процесса остывающего созревания; $\Delta\theta(\tau)$ — разность между температурой перехода θ_2 и температурой среды $\theta(\tau)$ в момент времени τ . Последний член отображает степень заполнения поверхности полупроводниковой пластины фазой с температурой θ_3 .

Уравнения (24), (27), (29) составляют полную систему уравнений рассматриваемой задачи. Подставляя (24) в (27), получим функцию распределения в том виде, в котором она была получена ранее для островковых пленок [21]:

$$g(u) = Cu(2-u)^{-4} \exp\left(-\frac{4}{2-u}\right), \quad (30)$$

где $u = R/R_c$.

Нормировочную константу C можно определить из уравнения (29).

Очевидно, что приведенная функция распределения зародышей по размерам не исчерпывает всех возможных механизмов укрупнения новой фазы. Однако чтобы учесть их (например, диффузию из окружающей среды), пришлось бы сделать предположения, не вытекающие прямо из физической модели, описанной в разделе 2.

Таким образом, на примере обратимого оптического теплового пробоя полупроводниковой пластины для сильно неравновесной системы удалось представить в едином подходе как процесс образования зародышей, так и поздние стадии, т.е. остывающее созревание. Для изучения кинетики неравновесного фазового перехода не делалось никаких дополнительных предположений, кроме лежащих в основе физической модели, отображающей свойства данной системы. Предложенный способ описания позволяет исследовать кинетику широкого класса неравновесных систем. Как известно, современные успехи теории самоорганизующихся систем в первую очередь связаны с тем, что термодинамически неравновесные системы, находящиеся в стационарном состоянии с детальным равновесием, формально неотличимы от равновесных [22], для анализа которых существует хорошо разработанный математический аппарат [8]. Физическое состояние такой термодинамической системы, значительно удаленной от равновесия, определяется ее характеристической функцией — обобщенным термодинамическим потенциалом [9,23,24]. Кинетика фазовых превращений указанных выше систем отображается уравнением Ландау–Халатникова, описывающим релаксацию фазовой переменной в новое, энергетически более выгодное состояние.

Однако для большинства физически значимых ситуаций в неравновесной кинетике (например, для модели, описываемой уравнением (3)) такая схема неприменима из-за сложности построения обобщенного термодинамического потенциала в аналитической форме. Развитый выше подход позволяет описать эволюцию сильно неравновесной системы по формальной аналогии с распадом пересыщенного твердого раствора, без использования аналитического вида обобщенного термодинамического потенциала.

Список литературы

- [1] C.R. Giuliano. Appl. Phys. Lett. **5**, 7, 137 (1964).
- [2] J.H. Cullom, R.W. Waynant. Appl. Opt. **3**, 8, 989 (1964).
- [3] Н.Н. Розанов. Оптическая бистабильность и гистерезис в распределенных нелинейных системах. М. (1997). 336 с.
- [4] P.A. Young. Appl. Opt. **10**, 3, 638 (1971).
- [5] Э.М. Эпштейн. Изв. вузов. Радиофизика **15**, 1, 33 (1972).
- [6] Н.Н. Розанов, Г.В. Холодова. Квантовая электрон. **13**, 2, 368 (1986).
- [7] А.В. Субашиев, И.М. Фишман. ЖЭТФ **93**, 6, 175 (1987).
- [8] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Статистическая физика. М. (1995). Ч. 1. 608 с.
- [9] R. Graham, T. Tel. Phys. Rev. **A42**, 4661 (1990).
- [10] Е.А. Бренер, В.И. Марченко, С.В. Мешков. ЖЭТФ **85**, 6, 2107 (1983).
- [11] Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский. Физическая кинетика. М. (1979). 528 с.
- [12] В.Г. Бойко, В.М. Сысоев, А.В. Чалый. ЖЭТФ **97**, 3, 842 (1990).
- [13] Ю.Е. Кузовлев, Т.К. Соболева, А.Э. Филлипов. ЖЭТФ **103**, 5, 1742 (1993).
- [14] B. Meerson, P.V. Sasorov. Phys. Rev. **E53**, 4, 3491 (1996).
- [15] И.М. Лифшиц, В.В. Слезов. ЖЭТФ **35**, 2, 479 (1958).
- [16] В.И. Марченко. Письма в ЖЭТФ **64**, 1, 61 (1996).
- [17] I.M. Lifshits, V.V. Slezov. J.Phys. Chem. Sol. **19**, 1/2, 35 (1961).
- [18] C. Wagner. Z. Electrochem. **65**, 7/8, 581 (1961).
- [19] G.W. Greenwood. The Mechanism of Phase Transformation in Crystalline Solids. London (1969).
- [20] R.D. Vengrenovich. Acta Met. **20**, 1079 (1982).
- [21] Р.Д. Венгреневич. УФЖ **22**, 2, 219 (1977).
- [22] A.I.S. Mikhailov. Foundation of Synergetics I. Distributed Active Systems. Berlin (1994). 213 p.
- [23] A. Hagberg, E.Meron. Phys. Rev. Lett. **72**, 15, 2494 (1994).
- [24] G. Izus, R.Deza, O. Ramirez, H.S. Wio, D.H. Zanette, C. Borzi. Phys. Rev. **E52**, 1, 129 (1995).