

02;07;12

Опико-пирометрическая диагностика состояния кремния при нанопульсном лазерном облучении

© Г.Д. Ивлев, Е.И. Гацкевич

Институт физики им. Б.И. Степанова НАН Белоруссии,
220090, Минск, Белоруссия
e-mail: ivlev@inel.bas-net.by

(Поступило в Редакцию 24 мая 2011 г.)

Исследована динамика отражательной способности на $\lambda = 0.53 \mu\text{m}$ и ИК-излучения кремния в интервале длин волн $0.9\text{--}1.2 \mu\text{m}$ в условиях наносекундного воздействия импульсов излучения рубинового лазера. При плотностях энергии облучения W ниже порога лазерно-индуцированного плавления поверхности полупроводникового кристалла подавляющий вклад в испускаемое им ИК-излучение обусловлен краевой фотолюминесценцией. С превышением порога плавления в наносекундной динамике детектируемого ИК-излучения наблюдается переход от фотолюминесценции к тепловому излучению образующейся расплава Si-фазы повышенной отражательной способности. Результаты пирометрических измерений пиковой температуры поверхности расплава в зависимости от W , получение на эффективной длине волны $\lambda_e = 1.04 \mu\text{m}$ детектируемого ИК-излучения, согласуются с данными аналогичных измерений на $\lambda_e = 0.53$ и $0.86 \mu\text{m}$.

Введение

Оптическая диагностика *in situ* является эффективным методом исследования лазерно-индуцированных процессов модификации полупроводниковых материалов, который чаще реализуется путем детектирования зондирующего оптического излучения, отраженного от излучаемого объекта. Именно этим методом было убедительно показано [1], что восстановление кристаллической структуры ионно-легированного слоя монокристалла кремния при наносекундном лазерном облучении происходит вследствие плавления и последующей жидкофазной эпитаксиальной кристаллизации, т. е. по тепловой модели, а не по обсуждавшемуся в то время механизму плазменного отжига.

Изучение динамики отражательной способности $R(t)$ полупроводников при лазерном иницировании в них быстрых фазовых превращений далее было проведено во многих работах, в том числе в наших экспериментах [2–4]. Вместе с тем известно довольно ограниченное число работ, в которых экспериментально с помощью метода оптической пирометрии [5–10] исследовалась температурная динамика фазовых переходов, происходящих в кремнии под действием наносекундных лазерных импульсов.

В экспериментах [8–10] измерения температуры проводились нами на эффективных длинах волн $\lambda_{e1} = 0.53$ и $\lambda_{e2} = 0.86 \mu\text{m}$ теплового излучения (ТИ), испускаемого нагретым поверхностным слоем образцов монокристаллического кремния (*c*-Si), которое детектировалось соответственно в видимой или ближней инфракрасной областях спектра.

Цель настоящей работы заключается в исследовании динамики нанопульсного лазерного воздействия на *c*-Si путем детектирования отраженного от облучаемой зоны зондирующего пучка ($\lambda = 0.53 \mu\text{m}$) и ее

ИК-излучения в спектральной области, соответствующей в пирометрических измерениях новой эффективной длине волны $\lambda_{e3} = 1.04 \mu\text{m}$.

Методика эксперимента

Механически и химически полированные образцы, вырезанные из пластины (толщина 0.35 mm) кремния КДБ-2 с кристаллографической ориентацией в плоскости (100), облучались одиночными импульсами рубинового лазера, длительность которых составляла 80 ns по уровню 0.5. Оптическая схема лазера с пассивной модуляцией добротности резонатора обеспечивала генерацию множества типов колебаний (мод) и отсутствие „горячих“ точек в лазерном пятне диаметром 4 mm , которое формировалось по проекционной схеме: изображение диафрагмы, осесимметрично помещенной в лазерной пучок, проектировалось собирающей линзой на поверхность исследуемого образца.

Неоднородность распределения энергии по зоне облучения не превышала $\pm 5\%$, а невоспроизводимость от импульса к импульсу задаваемой плотности энергии облучения W была не более $\pm 1\text{--}2\%$. Величина W варьировалась ослабляющими нейтральными фильтрами от 0.8 до 3.2 J/cm^2 . В качестве источника зондирующего пучка использовался лазер на стекле, активированном неодимом, работавший в свободном миллисекундном режиме генерации квазинепрерывного излучения ($\lambda = 1.06 \mu\text{m}$), которое частично преобразовывалось кристаллом KDP во вторую гармонику и поглощалось затем селективным фильтром.

Сколмированный пучок излучения второй гармоники ($\lambda = 0.53 \mu\text{m}$) *p*-поляризации фокусировался в центр зоны лазерного воздействия в пятно размером около 1 mm при угле падения на образец 40° . Его интенсивность в пятне была намного меньше плотности

потока воздействующего на образец лазерного импульса, что необходимо во избежание теплового вклада зондирующего пучка в исследуемые процессы. Отраженное от образца зондирующее излучение детектировалось фотоэлектронным умножителем ЭЛУ-ФТС.

Возбуждаемое лазерным воздействием ИК-излучение образцов детектировалось пирометрическим датчиком (детектор — ФЭУ-83 со светофильтром из стекла ИКС-7) в интервале длин волн $0.9\text{--}1.2\ \mu\text{m}$, характеризующимся шириной $\Delta\lambda = 0.17\ \mu\text{m}$ по уровню 0.5 относительно максимума фоточувствительности датчика. Датчиком, снабженным объективом и диафрагмой поля зрения, визировалась центральная область диаметром $1.7\ \text{mm}$ зоны лазерного воздействия и воспринималось излучение, испускаемое ею в телесный угол 0.06 стерадиан при угле визирования 20° . Выходные сигналы фотоприемников подавались на входы двулучевого запоминающего осциллографа. Время нарастания переходной характеристики регистрирующего тракта составляло $\sim 10\ \text{ns}$.

Результаты и обсуждение

Пороговая плотность энергии облучения $W = W_m$, при которой достигается плавление поверхности *c*-Si, определялась в аналогичных экспериментальных условиях [10] из зависимостей максимальной отражательной способности нагреваемой зоны $R_m(W)$ на длинах волн зондирующего пучка 0.53 и $1.06\ \mu\text{m}$. Относительно слабое увеличение соотношения R_m и начальной величины $R = R_c$ ($300\ \text{K}$) на той и другой длине волны, наблюдае-

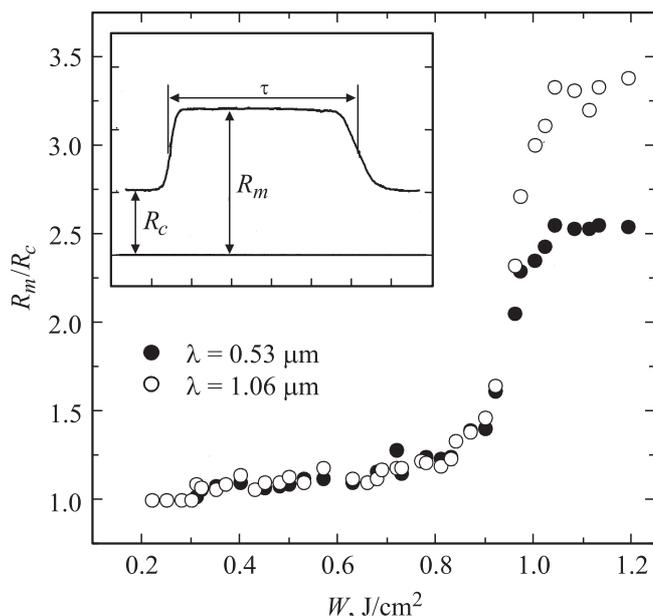


Рис. 1. Отношение величин максимальной и начальной отражательной способности кремния на длинах волн зондирующего пучка в зависимости от плотности энергии лазерного облучения.

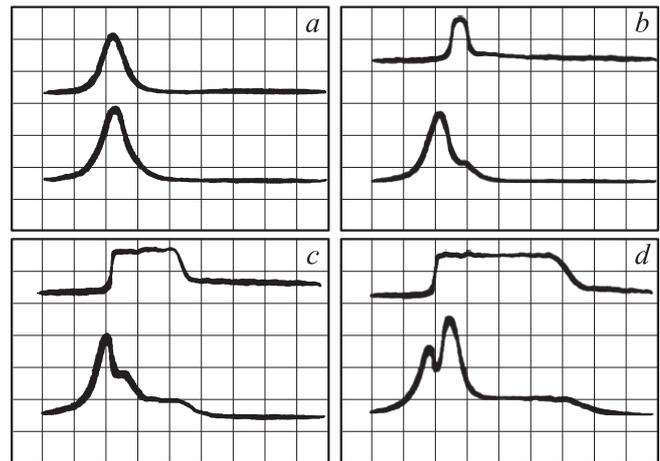


Рис. 2. Осциллограммы выходных сигналов фотоприемников, полученные при разных плотностях энергии лазерного облучения образца *c*-Si; масштаб развертки $100\ \text{ns}/\text{div}$; $W = 0.96$ (a), 1.2 (b), 2.2 (c) и $3.2\ \text{J}/\text{cm}^2$ (d).

мое по мере повышения W до $0.9\ \text{J}/\text{cm}^2$ (рис. 1), связано с температурной зависимостью оптических параметров *c*-Si. При $W = 1\ \text{J}/\text{cm}^2$ на поверхности образца возникает ультратонкий слой жидкой фазы. Его толщина несколько меньше толщины скин-слоя ($\sim 10\ \text{nm}$) в расплаве (*l*-Si), который, как известно, обладает свойствами жидкого металла.

Полное возрастание коэффициентов отражения до значений, соответствующих оптическим параметрам *l*-Si, достигается с преодолением величины $W_m = 1\ \text{J}/\text{cm}^2$ и проплавлением образца на глубину, превышающую толщину скин-слоя. В этой ситуации скачок отражательной способности кремния R_m/R_c во время действия лазерного импульса составляет 3.2 на длине волны $1.06\ \mu\text{m}$ и 2.5 на $\lambda = 0.53\ \mu\text{m}$.

На представленных осциллограммах (рис. 2) верхние линии развертки соответствуют воздействию на *c*-Si лазерному импульсу (a) и динамике отражения зондирующего излучения с $\lambda = 0.53\ \mu\text{m}$ (b–d). Видно, что время τ (рис. 1) продолжительности фазовых превращений, т.е. существования жидкой фазы, с повышением W от 1.2 до $3.2\ \text{J}/\text{cm}^2$ возрастает от 60 до 420 ns. При этом существенно меняется динамика детектируемого ИК-излучения кремния (нижние линии развертки), которая при величине $W = 0.96\ \text{J}/\text{cm}^2$ (близкой к W_m) практически повторяет форму лазерного импульса. При меньших энергиях облучения *c*-Si также наблюдалось соответствие этих сигналов по форме и длительности с одновременным достижением максимумов.

В этой связи следует отметить, что в условиях эксперимента практически вся полоса краевой фотолюминесценции (ФЛ) *c*-Si [11,12] попадает в спектральную область фоточувствительности датчика ИК-излучения. Кремний, являющийся непрямозонным полупроводником, характеризуется крайне низкой эффективностью преобразования энергии фотовозбуждения в энергию

ФЛ с энергией квантов 0.95–1.25 eV. Хотя доля излучательной рекомбинации весьма мала в общем балансе, но вследствие предельно высокого уровня фотовозбуждения *c*-Si возникающая краевая ФЛ по интенсивности значительно превосходит ТИ нагреваемой области в исследуемой области спектра до начала плавления — фазового перехода полупроводник→жидкий металл [13]. То есть выходной сигнал датчика ИК-излучения, регистрируемый при энергиях облучения *c*-Si ниже W_m , в основном обусловлен нестационарной ФЛ полупроводника, пропорциональной по интенсивности потоку падающего излучения и, таким образом, синхронно повторяющей форму воздействующего лазерного импульса.

При плотностях энергии в лазерном импульсе 1.2, 2.2 и 3.2 J/cm² (рис. 2, *b–d*), т.е. выше W_m , форма сигнала детектируемого ИК-излучения определяется динамикой ФЛ возбуждаемого слоя *c*-Si и далее динамикой ТИ-расплава в течение фазовых переходов *c*-Si↔1-Si. Обратимся к осциллограммам на рис. 2, *b*. Из них следует, что ФЛ нарастает до максимума, предшествующего началу плавления *c*-Si с чем связано возрастание R (верхняя линия развертки). Затем наблюдается тушение ФЛ в связи с нагревом поверхности образца до температуры T_m плавления *c*-Si и образования жидкой фазы, что отражается на фронте спада сигнала в виде ступеньки (нижняя линия развертки), уровень которой соответствует интенсивности ТИ-образца на стадии отвердевания расплавленного слоя. По мере увеличения W эта ступенька трансформируется в изотермическое плато того же уровня (осциллограммы на рис. 2, *c, d*), длящееся до окончания времени повышенной отражательной способности, т.е. завершения эпитаксиального процесса.

При повышении W до 2.2 J/cm² (осциллограмма на рис. 2, *c*) интенсивность ИК-излучения, достигнув максимума — максимума ФЛ, затем резко падает до уровня промежуточного плато, наличие которого связано с ТИ поверхности 1-Si, нагретой выше T_m , т.е. с достижением максимальной (пиковой) температуры расплава T_p во время движения границы раздела фаз вглубь монокристалла кремния. Наиболее показательны в этом аспекте осциллограммы на рис. 2, *d* (3.2 J/cm²). Из них следует, что максимум ФЛ достигается за 20 ns до начала плавления, после чего (через 45 ns) поверхность 1-Si нагревается до T_p , затем на стадии остывания уменьшается до температуры T_{cr} кристаллизации расплавленного слоя, которой соответствует уровень изотермического плато (неизменность интенсивности ТИ), длящегося 250 ns при общей продолжительности $\tau = 420$ ns фазовых превращений *c*-Si↔1-Si. В динамике интенсивности ИК-излучения кремния (ФЛ→ТИ) во время действия лазерного импульса наблюдается промежуточный минимум, который достигается именно к моменту начала плавления Si, с чем связано скачкообразное возрастание R .

Уровень сигнала U_c (изотермического плато, рис. 2, *d*) эквивалентен температуре $T_{cr} = 1665$ К [9], определенной в аналогичных условиях лазерного облучения образ-

цов *c*-Si. Это температура отвердевания расплавленного слоя кремния при движении межфазной границы в кристаллографическом направлении $\langle 100 \rangle$. Она на ~ 20 К меньше равновесной точки плавления (отвердевания) кремния (1685 К) и определялась в [9] по методу яркостной пирометрии по интенсивности детектируемого узкополосного ТИ-образца в видимой области спектра. Указанное значение T_{cr} в данном эксперименте является реперной температурной точкой при определении пиковой температуры T_p поверхности Si по формуле [10]

$$\frac{1}{T_p} - \frac{1}{T_{cr}} = \frac{\lambda_{e3}}{C_2} \ln \frac{U_c}{U_p}, \quad (1)$$

где $C_2 = 14388 \mu\text{m} \cdot \text{K}$ [14], $\lambda_{e3} = 1.04 \mu\text{m}$, U_p — величина сигнала, соответствующая температуре T_p . Формула справедлива при условии неизменности спектральной излучательной способности объекта с повышением температуры, что для 1-Si достаточно хорошо выполняется [15].

Эффективная длина волны λ_{e3} , на которой по определению [14] относительные изменения с температурой монохроматической яркости и регистрируемого пирометрического сигнала одинакова, была рассчитана для температурного интервала 1600–3000 К в приближении Вина по спектральной характеристике фоточувствительности датчика и величине T_{cr} . Установленная из измерений на λ_{e3} зависимость $T_p(W)$ (рис. 3) согласуется с соответствующими зависимостями [10], полученными при определении пиковой температуры поверхности 1-Si на эффективных длинах волн 0.53 и 0.86 μm , согласуются также результаты измерений $\tau(W)$.

Как следует из рис. 2, максимум сигнала ФЛ *c*-Si примерно равен пику сигнала ТИ на стадии плавления

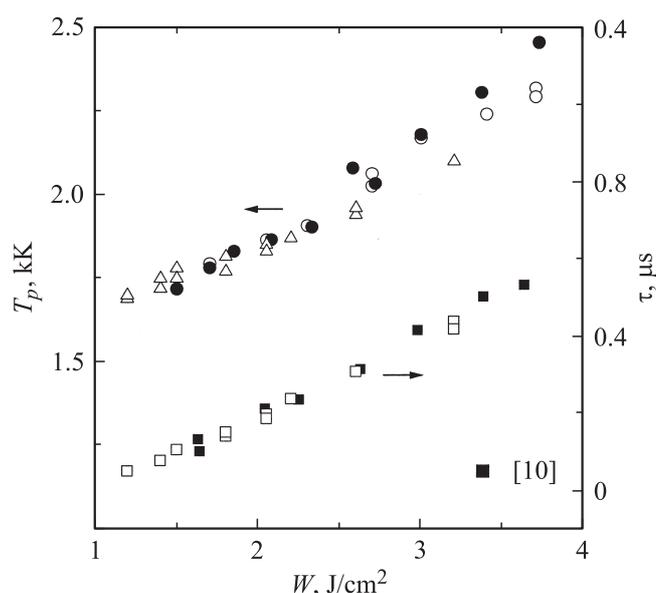


Рис. 3. Пиковая температура поверхности и время существования расплава Si в зависимости от плотности энергии лазерного облучения: ● — λ_{e1} [10], ○ — λ_{e2} [10], Δ — λ_{e3} .

(осциллограммы на рис. 2, *d*), соответствующему температуре поверхности расплава $T_p \approx 2200$ К (рис. 3). Воспользовавшись формулой Вина для реальных тел [14], в данном случае для расплавленного кремния, нагретого до температуры 2200 К, можно определить его спектральную энергетическую яркость на λ_{e3} и, приравняв ее к эквивалентной характеристике ФЛ, оценить квантовый выход ФЛ относительно возбуждающего ее лазерного излучения. Такая оценка дает величину порядка 10^{-6} .

Заключение

Таким образом, динамика ИК-излучения, испускаемого кремнием в исследованном спектральном интервале под действием наносекундного лазерного излучения с энергией квантов, превышающей ширину запрещенной зоны полупроводника, качественно различна при плотностях энергии в лазерном импульсе ниже и выше порога плавления облучаемой поверхности. При $W < W_m$ подавляющий вклад в испускаемое ею ИК-излучение вносит краевая фотолюминесценция лазерно-возбуждаемой области монокристалла Si. При $W > W_m$ в динамике ИК-излучения наблюдается переход от фотолюминесценции к тепловому излучению образующейся жидкой фазы. Установлено, что результаты пирометрических измерений ее пиковой температуры (максимальной температуры поверхности на стадии плавления) в зависимости от плотности энергии в лазерном импульсе, полученные на эффективной длине волны $1.04 \mu\text{m}$ детектируемого ИК-излучения, согласуются с данными измерений на $\lambda_e = 0.53$ и $0.86 \mu\text{m}$, реализованными ранее в аналогичных условиях эксперимента.

Работа выполнена при поддержке БРФФИ по проекту Ф09СО-015.

Список литературы

- [1] *Auston D.H., Surko C.M., Venkatesan T.N.C., Slusher R.E., Golovchenko J.A.* // Appl. Phys. Lett. 1978. Vol. 33. P. 437–440.
- [2] *Ивлев Г.Д.* // Письма в ЖТФ. 1982. Т. 8. № 8. С. 468–472.
- [3] *Ивлев Г.Д., Малевич В.Л.* // Квант. электрон. 1988. Т. 15. № 12. С. 2584–2586.
- [4] *Ивлев Г.Д., Гацкевич Е.И.* // ФТП. 2003. Т. 37. № 5. С. 622–628.
- [5] *Kemmler M., Wartmann G., von der Linde D.* // Appl. Phys. Lett. 1984. Vol. 45. P. 159–161.
- [6] *Ballet T.S., Kools J.C.S., Dieleman J.* // Appl. Surf. Sci. 1990. Vol. 46. P. 292–298.
- [7] *Xu X., Grigoropoulos C.P., Russo R.E.* // Appl. Phys. Lett. 1994. Vol. 65. P. 1745–1747.
- [8] *Ивлев Г.Д.* // Письма в ЖТФ. 1996. Т. 22. № 11. С. 86–90.
- [9] *Ivlev G.D., Gatskevich E.I.* // Appl. Surf. Sci. 1999. Vol. 143. P. 265–271.
- [10] *Ivlev G.D., Gatskevich E.I., Sharaev D.N.* // Proc. SPIE, 2001. Vol. 4157. P. 78–81.

- [11] *Гавриленко В.И., Грехов А.М., Корбутяк Д.В., Литовченко В.Г.* Оптические свойства полупроводников. Справочник. Киев: Наукова думка, 1987. 607 с.
- [12] *Гуле Е.Г., Каганович Э.Б., Кизяк И.М., Манойлов Э.Г., Свечников С.В.* // ФТП. 2005. Т. 39. № 4. С. 430–432.
- [13] *Регель А.Р., Глазов В.М.* Физические свойства электронных расплавов. М.: Наука, 1980. 296 с.
- [14] *Снопко В.Н.* Основы методов пирометрии по спектру теплового излучения. Минск: Ин-т физики им. Б.И. Степанова НАН Белоруссии, 1999. 224 с.
- [15] *Ивлев Г.Д., Гацкевич Е.И.* // ФТП. 1996. Т. 30. № 11. С. 2097–2107.