

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  $0.35 \text{ mm}$ ) кремния КДБ-2 с кристаллографической ориентацией в плоскости (100), облучались одиночными импульсами рубинового лазера, длительность которых составляла  $80 \text{ ns}$  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  $4 \text{ mm}$ , 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  $3.2 \text{ J/cm}^2$ . 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.

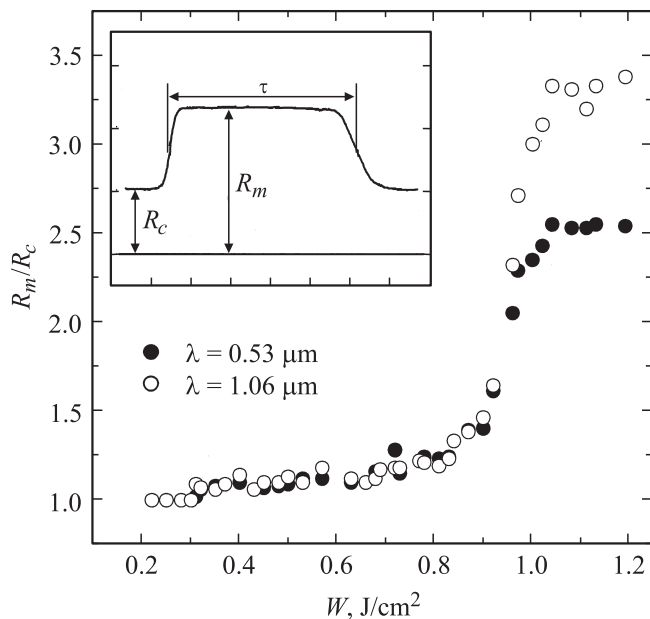
Сколмированный пучок излучения второй гармоники ( $\lambda = 0.53 \mu\text{m}$ ) *p*-поляризации фокусировался в центр зоны лазерного воздействия в пятно размером около  $1 \text{ mm}$  при угле падения на образец  $40^\circ$ . Его интенсивность в пятне была намного меньше плотности

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.

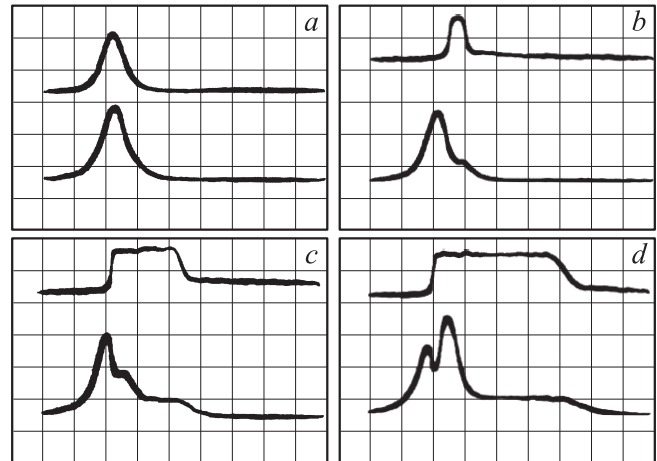
Возбуждаемое лазерным воздействием ИК-излучение образцов детектировалось пирометрическим датчиком (детектор — ФЭУ-83 со светофильтром из стекла ИКС-7) в интервале длин волн  $0.9\text{--}1.2\ \mu\text{m}$ , характеризующимся шириной  $\Delta\lambda = 0.17\ \mu\text{m}$  по уровню 0.5 относительно максимума 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  $20^\circ$ . 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  $\tau$  (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 фотолуминесценции (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/cm<sup>2</sup> (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/cm<sup>2</sup> (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/cm<sup>2</sup>). 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  $\sim 20$  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  $\lambda_{e3}$ , 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  $\lambda_{e3}$  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  $\mu\text{m}$ , согласуются также результаты измерений  $\tau(W)$ .

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

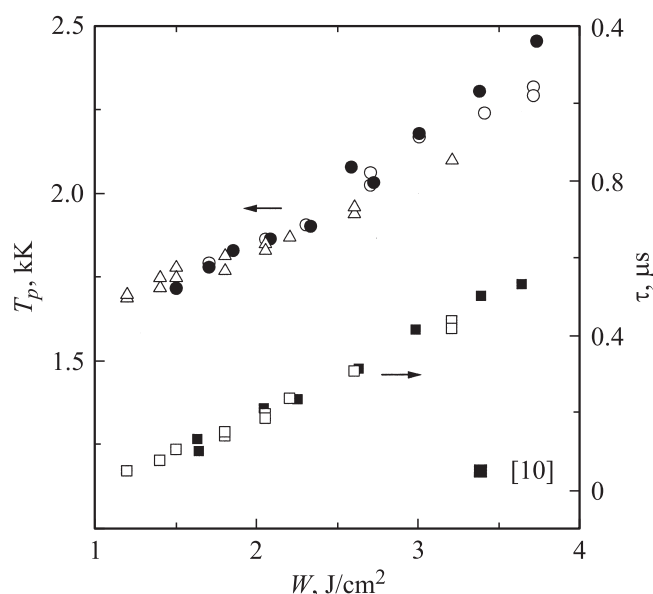


Рис. 3. Пиковая температура поверхности и время существования расплава Si в зависимости от плотности энергии лазерного облучения: ● —  $\lambda_{e1}$  [10], ○ —  $\lambda_{e2}$  [10], Δ —  $\lambda_{e3}$ .

(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  $\lambda_{e3}$  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.