

01

## Математическое моделирование температурного профиля металлических пленок при импульсном фотонном отжиге

© В.Н. Нечаев, А.В. Шуба

Воронежский государственный технический университет,  
394026 Воронеж, Россия  
e-mail: shandvit@rambler.ru

(Поступило в Редакцию 20 сентября 2013 г. В окончательной редакции 22 января 2014 г.)

В рамках модели термического пика получено точное решение системы уравнений теплопроводности для электронной и фононной подсистем и определена температура пленки, подверженной некогерентному световому облучению. Проанализированы степень влияния теплового контакта с окружением, затухания электромагнитного излучения на пространственное распределение температуры в пленке алюминия. Даны рекомендации по выбору оптимального режима фотонного отжига.

### Введение

Фотонный отжиг материалов некогерентным световым облучением имеет широкое распространение в материаловедении, микроэлектронной промышленности в связи с возможностью формирования однородной нанокристаллической структуры, создания субмикронных  $p$ - $n$ -переходов в кремнии методом стимулированной диффузии, синтеза оксидных пленок [1–4]. Это обусловлено простотой, относительной легкостью изменения режимов облучения, более высокой по сравнению с термическим отжигом скорости протекания процессов перестройки дефектной структуры и не требует наличия специального дорогостоящего оборудования. В отличие от термического отжига при фотонном отжиге [5,6] существенно уменьшается время термической нагрузки, что не позволяет развиваться трудноконтролируемым диффузионным процессам, приводящим в конечном счете к деградации электрофизических свойств материала, увеличению скорости твердофазных реакций. Но основное преимущество фотонного отжига, по-видимому, заключается в возможности подобрать оптимальные режимы облучения, обеспечивающие однородный разогрев материала. При термическом отжиге обязательно происходит неоднородный по объему нагрев материала. Значительные температурные градиенты приводят к большим термоупругим напряжениям, вызывающим упруго-пластическую деформацию, и в конечном счете к формированию неоднородной гетерогенной структуры, обеспечивающей неоднородность физических свойств материала. Действительно, если считать, что нагрев материала происходит как при обычном температурном отжиге с поверхности в результате контакта со средой, имеющей температуру  $T^{\text{ext}} > T_0$ , где  $T_0$  — комнатная температура, то, решая уравнение теплопроводности для пленки толщиной  $l$  с граничными условиями

$$\left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{x=0} = 0; \quad -k \left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{x=l} = \alpha(T - T^{\text{ext}})|_{x=l}$$

и начальным условием

$$T(x, 0) = T_0,$$

где  $k$  — коэффициент теплопроводности,  $\alpha$  — коэффициент теплопередачи, обеспечивающими нагрев внешней поверхности пленки, находим распределение температуры  $T$  в образце и характерное время  $\tau$  установления стационарного распределения температуры

$$\tau = \sqrt{\frac{C}{k\lambda_1}},$$

где  $C$  — теплоемкость материала,  $\lambda_1$  — наименьший корень трансцендентного уравнения

$$\text{tg}(\sqrt{\lambda}l) = \frac{\alpha}{k\sqrt{\lambda}}.$$

Численные оценки этой величины для алюминия:  $C = 903 \text{ J}/(\text{kg} \cdot \text{K})$ ,  $k = 237 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ ,  $\alpha = 29.03 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$  дают время  $\tau \sim 5.5\sqrt{l/s}$ . При толщине пленки  $l = 10^{-2} \text{ m}$  время  $\tau \sim 0.55 \text{ s}$ , при  $l = 10^{-4} \text{ m}$  время  $\tau \sim 0.055 \text{ s}$ . В течение этого времени в образце будет существовать температурный градиент, пропорциональный  $(T - T_0)/l$ . При применении фотонного отжига характерное время установления теплового равновесия значительно меньше. Температурные градиенты в этом случае обусловлены не столько нестационарным распределением температуры, поскольку нагревание материала идет сразу по всему объему, сколько условиями теплового контакта пленки с внешней средой и поглощением электромагнитного излучения при прохождении через вещество. Выбором оптимальных технологических условий они могут быть сделаны достаточно малыми, что должно приводить к формированию более однородной структуры. Небольшая тепловая инерция позволяет также использовать более высокие температуры отжига, применяя импульсную методику.

### Полная система соотношений, описывающая фотонный отжиг

При теоретическом анализе распределения температурных полей при фотонном отжиге важен механизм превращения энергии излучения в тепловую энергию. Отдельные элементарные акты передачи энергии от фотонов к фононам посредством электронов рассматривались в работах [7,8]. В рамках континуальной модели, используемой в настоящей работе, удобно применять представления, развитые для описания неравновесных состояний твердых тел, возникающих при бомбардировке материала тяжелыми ионами, при воздействии ультракоротких лазерных импульсов [9–12]. Во всех этих случаях при внешнем воздействии возникает двухтемпературная среда, электронная температура отличается от фоновой, если характерное время воздействия излучения меньше времени электрон-фононной релаксации. В случае фотонного отжига появление двухтемпературной среды связано с тем, что световое излучение поглощается валентными электронами, а затем энергия электрон-фононного взаимодействия передается ионной подсистеме. Математически этот процесс описывается системой связанных уравнений для электронной  $T_e(x, t)$  и ионной  $T_i(x, t)$  температур:

$$\begin{cases} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = k_e \frac{\partial^2 T_e}{\partial x^2} - g(T_e - T_i) + A(x, t), \\ C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = k_i \frac{\partial^2 T_i}{\partial x^2} + g(T_e - T_i). \end{cases} \quad (1)$$

Здесь величины с индексами « $e$ » и « $i$ » относятся к электронной и фононной подсистемам соответственно,  $g$  — коэффициент электрон-фононного взаимодействия,  $A(x, t)$  — мощность облучения.

В экспериментах по фотонному отжигу в качестве источника излучения применяются газоразрядные ксеноновые лампы, работающие в импульсном режиме с длительностью импульсов  $\sim 1-10$  ms, что позволяет снижать тепловую нагрузку на образец [5,13]. Тогда естественно считать, что функция  $A(x, t)$  является периодической функцией времени и экспоненциально убывающей функцией координаты  $x$  в соответствии с законом Бугера–Ламберта–Бера, если учитывать поглощение светового излучения. Для простоты будем предполагать форму функции  $A(x, t)$  ступенчатой с наименьшим периодом  $T = a + b$ :

$$A(x, t) = \begin{cases} A_0 \exp\left(-\frac{x-l}{L}\right), & nT \leq t \leq a + nT, \quad n \in Z, \\ 0, & a + nT \leq t \leq a + b + nT, \quad n \in Z, \end{cases} \quad (2)$$

где  $A_0$  — амплитуда облучения,  $a$  — длительность светового импульса,  $b$  — промежуток времени между импульсами,  $L \gg l$  — характерная глубина затухания

электромагнитной волны. Система уравнений (1) должна решаться совместно с граничными и начальными условиями для функций  $T_e, T_i$ :

$$\begin{aligned} \frac{\partial T_{e,i}}{\partial x} \Big|_{x=0} &= 0; \quad -k_{e,i} \frac{\partial T_{e,i}}{\partial x} \Big|_{x=l} = \alpha_{e,i}(T_{e,i} - T_0) \Big|_{x=l}, \\ T_{e,i}(x, 0) &= T_0. \end{aligned} \quad (3)$$

Значения всех параметров, кроме коэффициентов теплоотдачи  $\alpha_e, \alpha_i$ , входящих в граничные условия (3), известны с высокой степенью точности. В формировании коэффициента  $\alpha$  материала можно выделить два вклада: от конвективного  $\alpha^{(k)}$  и лучистого  $\alpha^{(\lambda)}$  теплообмена,

$$\alpha = \alpha^{(k)} + \alpha^{(\lambda)}.$$

Очевидно, что при высоких температурах нагрева пленки обмен излучением может быть сравним с конвекцией или даже превышать ее. Согласно закону Стефана–Больцмана, лучистая энергия, испускаемая с единицы поверхности за единицу времени, равна

$$Q = \beta \sigma_0 T_{e,i}^4, \quad (4)$$

где  $\sigma_0 = 5.67 \cdot 10^{-12} \text{ W}/(\text{cm}^2 \cdot \text{K}^4)$  — постоянная Стефана–Больцмана,  $\beta$  — излучательная способность тела (степень черноты). С другой стороны, по закону Ньютона–Рихмана

$$Q = \alpha^{(\lambda)}(T_{e,i} - T_0). \quad (5)$$

Приравняв выражения (4) и (5), получаем

$$\alpha^{(\lambda)} = \frac{\beta \sigma_0 T_{e,i}^4}{T_{e,i} - T_0}.$$

Для конвективного вклада в коэффициент теплоотдачи  $\alpha^{(k)}$  каких-либо приемлемых теоретических оценок, имеющих общий характер, не существует в силу сильной его зависимости от большого числа самых разнообразных факторов: от плотности контактирующей среды, режима ее движения, от геометрических размеров, формы тела и т.д. При выборе технологического режима для фотонного отжига желательно предварительно провести эксперимент по определению коэффициента  $\alpha^{(k)}$  для данного образца в условиях проведения эксперимента. Ситуация упрощается, если фотонный отжиг проводится в высоком вакууме [2,5,6,14]. В этом случае вкладом  $\alpha^{(k)}$  в коэффициент теплопередачи от конвективного теплообмена можно пренебречь, считая  $\alpha \sim \alpha^{(\lambda)}$ . Именно для такой ситуации нами в дальнейшем будут проводиться оценки.

### Решение системы уравнений и анализ результатов

Для решения задачи (1), (3) удобно перейти к новым переменным:  $U(x, t) = T_e(x, t) - T_0, V(x, t) = T_i(x, t) - T_0,$

тогда начальные и граничные условия (3) станут однородными и задача примет вид

$$\begin{cases} \frac{\partial U}{\partial t} = \frac{k_e}{C_e} \frac{\partial^2 U}{\partial x^2} - \frac{g}{C_e} (U - V) + \frac{A(x, t)}{C_e}, \\ \frac{\partial V}{\partial t} = \frac{k_i}{C_i} \frac{\partial^2 V}{\partial x^2} + \frac{g}{C_i} (U - V). \end{cases}$$

$$\begin{cases} U(x, 0) = 0, & V(x, 0) = 0, \\ \frac{\partial U}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0, & \frac{\partial V}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0, \\ \frac{\partial U}{\partial x} + sU \Big|_{x=l} = 0, & \frac{\partial V}{\partial x} + sV \Big|_{x=l} = 0. \end{cases} \quad (6)$$

Равенство  $\alpha_e/k_e = \alpha_i/k_i = s$  необходимо для равенства температур электронной и фононной подсистем в состоянии теплового равновесия.

Применив преобразование Лапласа к обеим частям уравнений системы (6) с учетом начальных условий (3), получим систему обыкновенных дифференциальных уравнений на функции-изображения  $\tilde{U}(x, p)$ ,  $\tilde{V}(x, p)$  с граничными условиями:

$$\begin{cases} \frac{d^2 \tilde{U}}{dx^2} - \left( \frac{g}{k_e} + p \frac{C_e}{k_e} \right) \tilde{U} + \frac{g}{k_e} \tilde{V} = -\frac{\tilde{A}(x, p)}{k_e}, \\ \frac{d^2 \tilde{V}}{dx^2} - \left( \frac{g}{k_i} + p \frac{C_i}{k_i} \right) \tilde{V} + \frac{g}{k_i} \tilde{U} = 0; \\ \frac{\partial \tilde{U}}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0, & \frac{\partial \tilde{V}}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0, \\ \frac{\partial \tilde{U}}{\partial x} + s\tilde{U} \Big|_{x=l} = 0, & \frac{\partial \tilde{V}}{\partial x} + s\tilde{V} \Big|_{x=l} = 0, \end{cases} \quad (7)$$

где изображение источника примет вид

$$\tilde{A}(x, p) = \frac{A_0}{p} \frac{1 - \exp(-pa)}{1 - \exp(-p(a+b))} \exp\left(\frac{x-l}{L}\right). \quad (8)$$

Решение задачи (7) будем искать в виде разложения по собственным функциям  $W_n(x)$ :

$$\tilde{U}(x, p) = \sum_{n=1}^{\infty} U_n(p) W_n(x), \quad \tilde{V}(x, p) = \sum_{n=1}^{\infty} V_n(p) W_n(x) \quad (9)$$

задачи Штурма–Лиувилля

$$\begin{cases} \frac{\partial^2 W}{\partial x^2} + \lambda W = 0, \\ \frac{\partial W}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0, \\ \frac{\partial W}{\partial x} + sW \Big|_{x=l} = 0, \end{cases}$$

где собственные функции  $W_n(x)$  имеют вид

$$W_n(x) = \cos(\sqrt{\lambda_n} x),$$

а собственные значения  $\lambda_n$  находятся численно из решения трансцендентного уравнения

$$\operatorname{tg} \sqrt{\lambda} l = \frac{s}{\sqrt{\lambda}}.$$

Для решения задачи (7) также необходимо разложить изображение источника (8) в ряд по собственным функциям

$$\tilde{A}(x, p) = \sum_{n=1}^{\infty} A_n(p) W_n(x), \quad (10)$$

где

$$A_n(p) = B_n \frac{1 - \exp(-pa)}{p(1 - \exp(-p(a+b)))},$$

$$B_n = \frac{2A_0 L (\lambda_n + s^2)}{l(\lambda_n + s^2) + s}$$

$$\times \frac{L\sqrt{\lambda_n} \sin(\sqrt{\lambda_n} l) + \cos(\sqrt{\lambda_n} l) - \exp(-l/L)}{1 + L^2 \lambda_n}.$$

Подстановка функций (9), (10) в систему (7) даст систему уравнений на коэффициенты  $U_n(p)$ ,  $V_n(p)$ :

$$\begin{cases} \left( \lambda_n + \frac{g}{k_e} + p \frac{C_e}{k_e} \right) U_n(p) - \frac{g}{k_e} V_n(p) = \frac{A_n(p)}{k_e}, \\ \left( \lambda_n + \frac{g}{k_i} + p \frac{C_i}{k_i} \right) V_n(p) - \frac{g}{k_i} U_n(p) = 0, \end{cases}$$

решение которой имеет вид

$$U_n(p) = \frac{B_n (\lambda_n k_i + g + p C_i) (1 - \exp(-pa))}{p(p + \Lambda_n - \sqrt{D})(p + \Lambda_n + \sqrt{D})(1 - \exp(-p(a+b)))},$$

$$V_n(p) = \frac{B_n (1 - \exp(-pa))}{p((p + \Lambda_n - \sqrt{D})(p + \Lambda_n + \sqrt{D})(1 - \exp(-p(a+b))))}, \quad (11)$$

$$\Lambda_n = \frac{\lambda_n k_e + g}{2C_e} + \frac{\lambda_n k_i + g}{2C_i};$$

$$D = \left( \frac{\lambda_n k_e + g}{2C_e} - \frac{\lambda_n k_i + g}{2C_i} \right)^2 + \frac{g^2}{C_e C_i}.$$

Подставляя коэффициенты (11) в функции (9) и совершая обратное преобразование Лапласа  $\tilde{U}(x, p) \Leftrightarrow U(x, t)$ ,  $\tilde{V}(x, p) \Leftrightarrow V(x, t)$  с помощью основной теоремы о вычетах, а затем усредняя по времени, получим

$$U(x) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{B_n}{(a+b)} \left[ \frac{a(\lambda_n k_i + g)}{\lambda_n (\lambda_n k_e k_i + g k_e + g k_i)} + \frac{C_e C_i (1 - \exp(a(\Lambda_n - \sqrt{D})))}{2\sqrt{D}(\Lambda_n - \sqrt{D})^2 \exp((a+b)(\Lambda_n - \sqrt{D}))} - \frac{C_e C_i (1 - \exp(a(\Lambda_n + \sqrt{D}))) (\lambda_n k_i + g - C_i (\Lambda_n + \sqrt{D}))}{2\sqrt{D}(\Lambda_n + \sqrt{D})^2 \exp((a+b)(\Lambda_n + \sqrt{D}))} \right] \times \cos(\sqrt{\lambda_n} x),$$

$$V_x = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{B_n g}{(a+b)} \left[ \frac{a}{\lambda_n (\lambda_n k_e k_i + g k_e + g k_i)} + \frac{C_e C_i (1 - \exp(a(\Lambda_n - \sqrt{D})))}{2\sqrt{D}(\Lambda_n - \sqrt{D})^2 \exp((a+b)(\Lambda_n - \sqrt{D}))} - \frac{C_e C_i (1 - \exp(a(\Lambda_n + \sqrt{D})))}{2\sqrt{D}(\Lambda_n + \sqrt{D})^2 \exp((a+b)(\Lambda_n + \sqrt{D}))} \right] \times \cos(\sqrt{\lambda_n} x).$$

Далее расчет температурного профиля для конкретной экспериментальной ситуации должен выполняться численно с использованием полученных формул. Для примера возьмем алюминиевую пленку толщиной  $l = 500 \mu\text{m}$  с параметрами:  $C = 2.428 \text{ J}/(\text{cm}^3 \cdot \text{K})$ ,  $k = 2.37 \text{ W}/(\text{cm} \cdot \text{K})$ ,  $g = 3 \cdot 10^{11} \text{ W}/(\text{cm}^3 \cdot \text{K})$  [14,15]. Пользуясь известными соотношениями между величинами  $C_i/C_e \sim k_e/k_i \sim 100$  и считая температуру окружающей среды  $T_0 = 300 \text{ K}$  и характерную глубину затухания  $L = 50 \text{ cm}$  постоянными, найдем температурный профиль кристаллической решетки  $V(x)$ , принимая параметры светового импульса равными  $a = 2 \text{ ms}$ ,  $b = 1 \text{ ms}$  для разных амплитуд облучения  $A_0$  (рис. 1).

Как и следовало ожидать, нагрев пленки происходит достаточно равномерно по всей толщине. Величина температурного градиента невелика и не превышает нескольких градусов, причина его появления — разные условия теплообмена на плоскостях пленки (см. (3)) и затухание светового излучения при распространении его вглубь образца. С увеличением толщины пленки разность температур  $T_i(0) - T_i(l)$  между ее плоскостями растет линейно (рис. 2), причем наклон соответствующей прямой зависит от мощности падающего излучения.

Достижение определенной температуры, необходимой для термической активации релаксационных процессов в пленке [4,6], в сочетании с технологически допустимым градиентом температуры возможно в результате подбора параметров  $a, b$ , мощности светового импульса и длительности облучения (рис. 1, 3).

Отметим, что поведение температурных зависимостей  $T_i(x) - T_0$ , полученных здесь, качественно отличается от результатов [16], где предполагалось, что нагрев образца при облучении некогерентным светом ксеноновых ламп происходит с поверхности образца.

Заметим, что в гетерогенном материале в отличие от рассматриваемого в настоящей работе однородного при импульсном фотонном отжиге даже при равномерном нагреве обязательно должны возникнуть значительные термоупругие напряжения вследствие различия тепловых свойств отдельных частей образца. Эти напряжения могут существенно повлиять на формирование отожженной структуры. Однако в настоящее время этот вопрос не изучен ни теоретически, ни экспериментально. В гетерогенном материале возможны также и другие механизмы фотонного отжига [17].

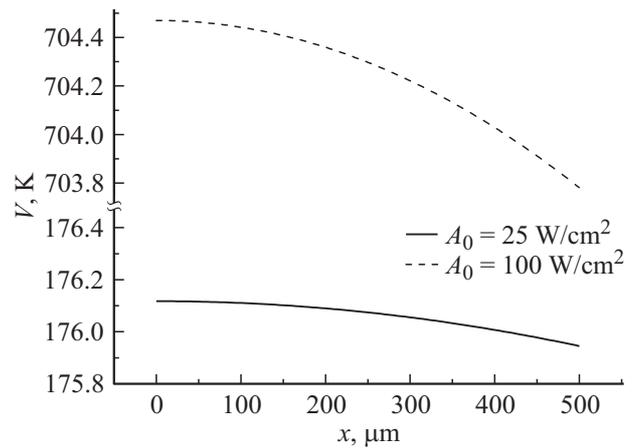


Рис. 1. Распределение отклонения  $V = T_i - T_0$  температуры от комнатной  $T_0$  по толщине пленки для разных амплитуд облучения  $A_0$ .

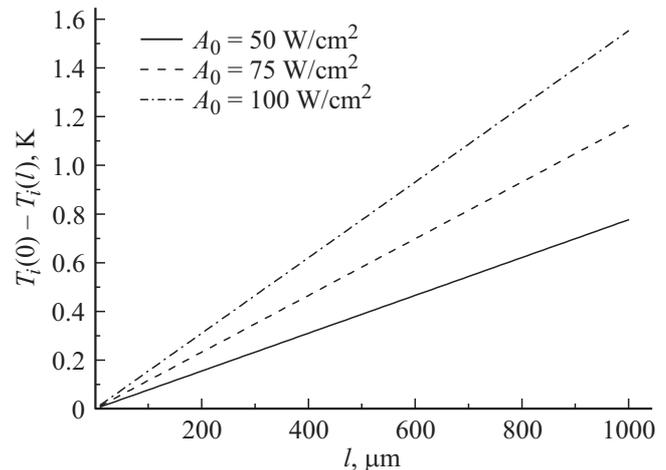


Рис. 2. Зависимость разности температур  $T_i(0) - T_i(l)$  между плоскостями пленки от ее толщины  $l$ .

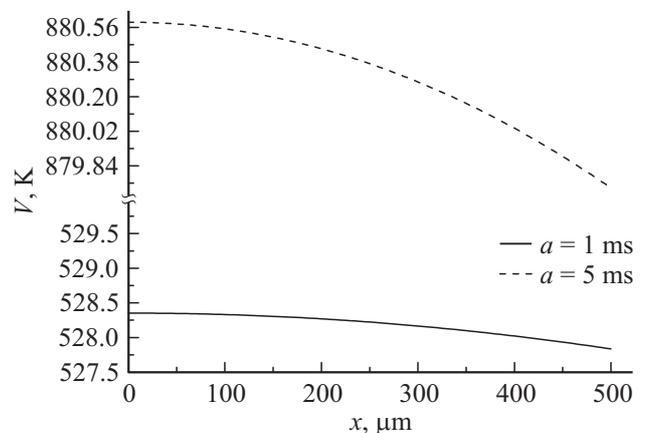


Рис. 3. Профиль отклонения  $V = T_i - T_0$  температуры пленки от комнатной  $T_0$  при разной длительности  $a$  светового импульса амплитуды  $A_0 = 100 \text{ W}/\text{cm}^2$ .

## Заключение

В настоящей работе произведен аналитический расчет температурного профиля для электронной и фононной подсистем с привлечением операционного исчисления и метода разложения по собственным функциям. Практическая ценность представленных результатов заключается в возможности выбирать нужный тепловой режим для обеспечения протекания того или иного физического процесса внутри металлических пленок путем подбора времени и мощности фотонного облучения, длительности отдельного светового импульса и частоты следования импульсов.

Авторы выражают благодарность проф. С.Б. Куцеву за консультацию по методике применения фотонного отжига.

## Список литературы

- [1] Шишияну С.Т., Шишияну Т.С., Райлян С.К. // ФТП. 2002. Т. 36. Вып. 5. С. 611–616.
- [2] Салтыков С.Н., Харин А.Н., Ховив А.М. // Конденсированные среды и межфазные границы. 2009. Т. 11. № 2. С. 147–151.
- [3] Салтыков С.Н., Максименко А.А., Ховив А.М. // Вестник ВГУ. Серия: Химия. Биология. Фармация. 2009. № 2. С. 54–58.
- [4] Куцев С.Б., Канныкин С.В., Бугаков А.В., Санин В.Н. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2008. № 1. С. 48–53.
- [5] Белоусов О.К., Вавилова В.В., Иевлев В.М., Калинин Ю.Е., Ковнеристый Ю.К., Палий Н.А., Куцев С.Б., Паказаньева С.А., Самцова Н.П. // Деформация и разрушение материалов. 2007. № 6. С. 10–18.
- [6] Белоусов О.К., Вавилова В.В., Иевлев В.М., Калинин Ю.Е., Куцев С.Б., Палий Н.А., Паказаньева С.А. // Неорганические материалы. 2009. Т. 45. № 8. С. 941–948.
- [7] Даринский Б.М., Юдин Л.Ю. // Известия РАН. Сер. физ. 2011. Т. 75. №10. С. 1390–1393.
- [8] Иевлев В.М., Тураева Т.Л., Латышев А.Н. // ФММ. 2007. Т. 103. № 1. С. 61–72.
- [9] Амирханов И.В., Дидык А.Ю., Музафаров Д.З., Пузынин И.В., Пузынина Т.П., Саркар Н.Р., Сархадов И., Шарипов З.А. // Тез. докл. V Нац. конф. „РСНЭ-НАНО-2005“. ИК РАН, М., 2005. С. 321.
- [10] Амирханов И.В., Дидык А.Ю., Саркар Н.Р., Сархадов И., Семина В.К., Хофман А., Шарипов З.А. // Письма в ЭЧАЯ. 2006. Т. 3. № 5 (134). С. 80–91.
- [11] Лифшиц И.М., Каганов М.И., Тантаров Л.В. // АЭ. 1959. Т. 6. С. 391–402.
- [12] Каганов М.И., Лифшиц И.М., Тантаров Л.В. // ЖЭТФ. 1956. Т. 31. № 2 (8). С. 232–237.
- [13] Маркевич М.И., Чапанов А.М., Щербакова Е.Н. // Наука и техника. 2013. № 2. С. 63–66.
- [14] Физические величины. Справочник / Под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. М.: Энергоатомиздат, 1991. 1232 с.
- [15] Петров Ю.В., Иногамов Н.А., Мигдал К.П. // Письма в ЖЭТФ. 2013. Т. 97. Вып. 1. С. 24–31.
- [16] Куцев С.Б., Санин В.Н. // Вестник ВГТУ. 1998. Вып. 1.3. С. 66–69.
- [17] Нечаев В.Н., Шуба А.В. // Вестник ВГТУ. 2011. Т. 7. № 12.1. С. 45–47.