# ФИЗИКА ТВЕРДОГО ТЕЛА

УДК 548.4

## ДЕФЕКТНО-ДЕФОРМАЦИОННАЯ ТЕОРИЯ ОБРАЗОВАНИЯ СУБГРАНИЦ ПРИ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ ПЛЕНОК

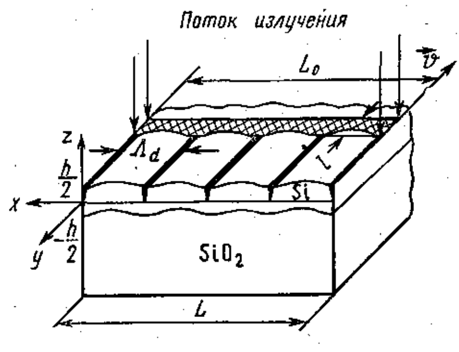
**В. И. Емельянов, А. А. Сумбатов**

*(кафедра общей физики и волновых процессов; Институт кристаллографии АН СССР)*

**Предложен новый (дефектно-деформационный) механизм образования субграниц при лазерной перекристаллизации полупроводниковых пленок. На его основе развита теория, дающая явное аналитическое выражение для расстояния между субграницами как функции толщины пленки и скорости движения зоны расплава. Полученные теоретические результаты хорошо согласуются с экспериментальными фактами.**

### 1. Введение

Проблема образования субграниц при лучевой перекристаллизации аморфных и поликристаллических пленок полупроводников на изоляторах представляет большой практический и научный интерес (см. обзоры [1, 2]). В процессе перекристаллизации полоска расплава шириной $l$ и длиной $L_0$, создаваемая внешним потоком энергии (лазерным лучом, полосковым графитовым нагревателем и т. д.), движется вдоль пленки Si толщиной $h$ со скоростью сканирования $\mathbf{v}$ (рисунок). При этом после прохождения зоны расплава в пленке образуются монокристаллические полоски, вытянутые вдоль направления сканирования и разделенные субграницами. В направлении, перпендикулярном $\mathbf{v}$, они образуют квазипериодическую структуру с периодом




Геометрия образования квазипериодических субграниц при лучевой перекристаллизации пленки Si на аморфной подложке $SiO_2$. Расстояние между субграницами равно $\Lambda_d$

$d$ (см. рисунок). Экспериментальные исследования этого эффекта выявили следующие основные закономерности. Субграницы представляют собой скопления дислокаций, вытянутые вдоль направления сканирования [3, 4]. Среднее расстояние между субграницами $\Lambda_d \sim h$ [3] и в режиме достаточно высоких скоростей ($|\mathbf{v}| > 0{,}1$ мм/с) $\Lambda_d \sim \sqrt{|\mathbf{v}|}$ [3]. Рельеф поверхности перекристаллизованной пленки с субграницами периодически модулирован в направлении, перпендикулярном $\mathbf{v}$ (см. рисунок) с периодом того же порядка, что и $\Lambda_d$ [4]. Фронт кристаллизации имеет пилообразную форму, причем субграницы исходят из впадин фронта [3, 5].

Для объяснения тех или иных закономерностей данного эффекта был предложен ряд теоретических моделей [1, 2]. Однако, на наш взгляд, отсутствует модель, с единой точки зрения объясняющая перечисленные выше экспериментальные факты и дающая количественное согласие с экспериментом (в частности, по зависимости $\Lambda_d=\Lambda_d(|\mathbf{v}|, h)$).

В настоящей работе предлагается новый дефектно-деформационный (ДД) механизм образования субграниц при лучевой перекристаллизации пленок, на его основе построена теория, выводы которой находятся в соответствии с перечисленными выше экспериментальными результатами.

Физическая суть предлагаемого механизма состоит в следующем. Мы будем предполагать, что после отвердевания расплава в пленке имеется большое количество точечных дефектов с концентрацией $n_d$ (вакансий ($d=v$) или междоузлий ($d=i$)) [6]. Если плотность $n_d$ превышает определенное критическое значение $n_{cr}$, то пространственно-однородное распределение дефектов становится неустойчивым и образуется одномерная решетка скоплений дефектов с одновременным самосогласованным возникновением синфазной решетки изгибных деформаций пленки [7, 8]. На следующем этапе при превышении второго критического значения концентрации дефектов $n_{2cr}$ кластеры дефектов вследствие диффузионно-деформационной неустойчивости коллапсируют в дислокационные петли [9, 10]. Таким образом, в результате образуются периодические скопления дислокаций, которые в данном ДД-механизме и соответствуют субграницам. Ниже мы построим теорию первого этапа образования субграниц по ДД-механизму и покажем соответствие ее результатов экспериментальным результатам.

## 2. Связанная система уравнений для изгибных деформаций пленки и концентрации дефектов

Экспериментально обычно используются многослойные структуры, к примеру структура $SiO_2$—Si—$SiO_2$. Мы, однако, рассмотрим основные черты ДД-механизма на примере упрощенной модели — свободной пленки Si. Направим ось $z$ перпендикулярно плоскости пленки, плоскость $z=0$ совпадает со срединной плоскостью пленки, ось $x$ направим перпендикулярно $\mathbf{v}$ (см. рисунок). Плотность энергии взаимодействия дефектов с упругим континуумом определяется выражением [11]

$$H=-n\Theta_d \operatorname{div}\mathbf{u},\quad \Theta_d=Ka^3 \operatorname{sgn} d, \tag{1}$$

где $\mathbf{u}$ — вектор смещения среды, $\operatorname{sgn} d=\{1,\ d=i,\ -1,\ d=v\}$, $K$ — модуль упругости, $a$ — параметр ячейки. В направлении скорости сканирования существуют большие температурные градиенты. Они приводят к сильным потокам дефектов в этом направлении, препятствующим процессу их периодического перераспределения. Таким образом, решетка дефектов формируется только в направлении оси $x$. С учетом (1) уравнение для $n_d$ запишем в виде

$$\partial n_d/\partial t=D_d\Delta n_d-n_d/\tau_d-n_d\Theta_d(D_d \operatorname{div}\mathbf{u})/k_BT, \tag{2}$$

где $D_d$ и $\tau_d$ — соответственно коэффициент диффузии и время жизни дефектов, $T$ — температура, $k_B$ — постоянная Больцмана. Последний член в (2) описывает деформационно-индуцированный дрейф дефектов.

При изгибной деформации пленки [12]

$$\operatorname{div}\mathbf{u} = -z\nu\partial^2\zeta/\partial x^2, \tag{3}$$

где $\zeta=\zeta(x)$ — смещение точек срединной плоскости вдоль $z$ (координата изгиба), $\nu=(1-2\sigma)/(1-\sigma)$, где $\sigma$ — коэффициент Пуассона.

Нелинейное уравнение для изгибной координаты $\zeta$ можно получить из [12, 13], учитывая, что со стороны подсистемы вакансий действует, как следует из (1), сила, изгибающая пленку:

$$\frac{\partial^2\zeta}{\partial t^2} + \frac{c^2h^2}{12}\frac{\partial^4\zeta}{\partial x^4} - \frac{c^2}{2}\frac{\partial^2\zeta}{\partial x^2}\left(\frac{\partial\zeta}{\partial x}\right)^2\Bigg|_{z=0} = \frac{\Theta_d}{\rho h}\int\limits_{-h/2}^{h/2}(\nabla n_d)_z\,dz, \tag{4}$$

где $c^2=E/(1-\sigma^2)\rho$, $E$ — модуль Юнга, $\rho$ — плотность среды.

### 3. Неустойчивость пространственно-однородного вдоль поверхности распределения дефектов и образование квазипериодических дефектно-деформационных (изгибных) решеток

Предположим, что благодаря неоднородному по оси $z$ распределению деформаций в пленке Si (структура $SiO_2$—Si—$SiO_2$) устанавливается неравномерное по $z$ распределение дефектов. При этом $n_d(h/2) \gg n_d(-h/2)$, так что в правой части уравнения (4) можно пренебречь $n_d(-h/2)$ по сравнению с $n_d(h/2)$. Представим далее переменные задачи в виде $n_d=n_{d0}+n_{d1}$, $\zeta=\zeta_0+\zeta_1$, $\mathbf{u}=\mathbf{u}_0+\mathbf{u}_1$, где $n_{d0}$, $\zeta_0$, $\mathbf{u}_0$ — решения, пространственно-однородные вдоль поверхности, а $n_{d1}\equiv n_{d1}(h/2)$, $\zeta_1$, $\mathbf{u}_1$ — пространственно неоднородные, причем

$$\begin{aligned}\zeta_1 &= N^{-1}\sum_q \zeta_q(t)\exp(iqx) + \text{к. с.},\\ n_{d1} &= N^{-1}\sum_q n_{dq}(t)\exp\{iqx\} + \text{к. с.},\end{aligned} \tag{5}$$

где $N=L/(2\pi h)$, $L$ — размер пленки в направлении $x$. Тогда для $n_{d1}, \zeta_1$ имеем из (2)—(4) уравнения

$$\frac{\partial n_{d1}}{\partial t} = D_d\frac{\partial^2 n_{d1}}{\partial x^2} - \frac{n_{d1}}{\tau_d} + \frac{n_{d0}\Theta_d h\nu D_d}{2k_BT}\frac{\partial^4\zeta_1}{\partial x^4}, \tag{6}$$

$$\frac{\partial^2\zeta_1}{\partial t^2} + \frac{c^2h^2}{12}\frac{\partial^4\zeta_1}{\partial x^4} - \frac{c^2}{2}\frac{\partial^2\zeta_1}{\partial x^2}\left(\frac{\partial\zeta_1}{\partial x}\right)^2 = \frac{\Theta_d n_{d1}}{\rho h}. \tag{7}$$

Уравнения (6), (7) составляют замкнутую систему уравнений для описания спонтанного образования дефектно-деформационных (изгибных) структур в пленке.

а) Линейный режим неустойчивости

Положив в (5) $\zeta_d(t)=\zeta_q\exp(\lambda t)$, $n_{dq}(t)=n_{dq}\exp\{\lambda t\}$ и пренебрегая нелинейностью в (7), получаем при условии $\lambda^2 \ll q^4c^2h^2/12$ дисперсионное соотношение для инкремента $\lambda$:

$$\lambda = \lambda(q) = R_d - D_q q^2 - \tau_d^{-1}, \tag{8}$$

где параметр, управляющий неустойчивостью,

$$R_d = 6\Theta_d^2\nu n_{d0}D_d/(\rho c^2k_BTh^2).$$

Таким образом, каждому значению волнового числа $q$ соответствует критическое значение $R_{d\,cr}=R_{d\,cr}(q)$ такое, что при $R_d > R_{d\,cr}$ имеем $\lambda(q)>0$, т. е. начинается экспоненциальное во времени нарастание фурье-амплитуд связанных полей изгибной деформации и концентрации дефектов. Для возникновения неустойчивости необходимо, чтобы $R_d > \tau_d$, т. е. концентрация дефектов должна превысить критическое значение

$$n_{d\,cr}=\rho c^2 k_B T h^2/(6\Theta_d^2 \nu D_d \tau_d). \tag{9}$$

б) Нелинейный стационарный режим: образование квазипериодических дефектно-деформационных (изгибных) решеток.

Стабилизация системы происходит вследствие нелинейности изгибных деформаций. В стационарном режиме ($\partial n_{d1}/\partial t=0$, $\partial^2\zeta_1/\partial t^2=0$) из (6), (7) и (5), где $\zeta_q(t)=\zeta_q=\mathrm{const}$, $n_{dq}(t)=n_{dq}=\mathrm{const}$, имеем выражение для стационарной фурье-амплитуды волны изгибной деформации пленки:

$$\zeta_q=(h/\sqrt{6})\left[R_d/(D_d q^2+\tau_d^{-1})-1\right]^{1/2} \tag{10}$$

и выражение для фурье-амплитуды волны концентрации дефектов:

$$n_{dq}=R_d \rho c^2 h^3 q^4 \zeta_d/[12\Theta_d(D_d q^2+\tau_d^{-1})]. \tag{11}$$

Результирующие поля изгибной деформации и концентрации дефектов получаем из (5), (10), (11) суммированием по $q$, где $0\leqslant q\leqslant q_d\equiv \equiv[(R_d-\tau_d^{-1})/D_q]^{1/2}$. Ограничиваясь далее случаем слабого превышения над порогом неустойчивости ($0<R_d-\tau_d^{-1}\leqslant\tau_d^{-1}$), получаем для результирующего поля изгибной деформации

$$\zeta_1(x)=\frac{h^2}{\sqrt{6}}\left(\frac{n_{d0}}{n_{d\,cr}}-1\right)^{1/2}\frac{\sin q_d x}{x}. \tag{12}$$

Для поля концентрации дефектов имеем

$$n_{d1}(x)=(\mathrm{sgn}\, d)\, G q_d^3\,\frac{\sin q_d x}{x}, \tag{13}$$

где

$$G=R_d c^2 h^5 \rho q_d\,\frac{(n_{d0}/n_{d\,cr}-1)^{1/2}}{12\sqrt{6}\,|\Theta_d|\,\tau_d^{-1}}. \tag{14}$$

Как видно из (12)—(14), период образующихся решеток изгибной деформации и концентрации дефектов равен

$$\Lambda_d=\frac{2\pi}{q_d}=2\pi(D_d\tau_d)^{1/2}\left(\frac{n_{d0}}{n_{d\,cr}}-1\right)^{-1/2}. \tag{15}$$

Таким образом, в пленке образуются квазипериодические связанные волновые пакеты изгибной деформации и концентрации дефектов. Процесс образования этих структур представляет собой фазовый переход второго рода, имеющий место, когда управляющий параметр $n_{d0}$ превышает критическое значение $n_{d\,cr}$.

## 4. Образование квазипериодических субграниц. Сравнение теории с экспериментом

Как показано в [9, 10], скопления точечных дефектов неустойчивы и могут переходить в локализованное состояние с одновременным возникновением локальной деформации (сжатие в случае вакансий и растяжение в случае междоузлий). При определенных условиях такой локализованный кластер коллапсирует в дислокационную петлю (см. [9]). Если эти процессы спонтанной деформационно-индуцированной генерации дислокаций происходят в пространственно-периодических кластерах дефектов, описываемых формулой (13), то в результате получаются периодические скопления дислокаций (т. е. субграницы) с периодом (15).

Проведем сравнение результатов данной теории с экспериментальными данными. Рассмотрим сначала общий вид пленки с субграницами, который получается в результате развития рассмотренной здесь неустойчивости. Мы получили пространственные квазилокализованные волновые пакеты статической изгибной деформации и концентрации дефектов, осциллирующие вдоль оси $x$ с периодом $\Lambda_d$ и не зависящие от $y$. Размер области локализации одного пакета вдоль $x$ порядка нескольких $\Lambda_d \ll L$. В общем случае вдоль оси $x$ возникает много таких пакетов, образующих картину квазипериодических субграниц с тем же периодом и с модуляцией рельефа поверхности (см. рисунок). Эта картина соответствует экспериментально наблюдаемой [4]. При этом, как следует из (12)—(14), субграницы, соответствующие максимумам $n_{d1}(x)$, располагаются в случае вакансионного механизма во впадинах рельефа $(\min \zeta_1(x))$, т. е. в областях сжатия среды. Известно, что в области сжатия температура плавления кремния снижается [14], поэтому фронт кристаллизации поверхности пленки должен быть изрезан, причем впадины фронта совпадают с впадинами рельефа, т. е. с положением субграниц (см. рисунок), что действительно наблюдается экспериментально [15].

Обсудим вопрос о пространственной периодичности субграниц. Из (15) при $n_{d0} \gg n_{dcr}$ имеем для расстояния между субграницами в случае генерации вакансий

$$\Lambda_v = \pi \sqrt{2} (1+\sigma)^{-1/2} h (n/n_{v0})^{1/2} (k_B T/\Theta_v)^{1/2}, \tag{16}$$

где $n = 1/a^3$.

Для определения $n_{v0}$ заметим, что в реальных условиях экспериментов [1, 2] время существования расплава в данной точке равно $\tau = l/|\mathbf{v}|$ (считаем, что локальное плавление и отвердевание с приходом и уходом луча происходит мгновенно). За время $\tau$ концентрация генерируемых вакансий достигает значения $n_{v0} = g_v \tau = g_v l/|\mathbf{v}|$, где $g_v = g_v(T)$ — скорость порождения вакансий в расплаве. Мы предполагаем, что в жидкой фазе стоки отсутствуют и вакансии не достигают границ пленки за время $\tau$, так как диффузия подавлена из-за высокого давления, возникающего в многослойной структуре $SiO_2$ (твердый) — $Si$ (жидкий) — $SiO_2$ (твердый). С учетом этого из (16) имеем

$$\Lambda_v = \mathrm{const} \sqrt{|\mathbf{v}|} \cdot h, \tag{17}$$

где $\mathrm{const} = \pi \sqrt{2} (1+\sigma)^{-1/2} (n/g_v l)^{1/2} (k_B T/\Theta_v)^{1/2}$ и для интересующих нас значений $|\mathbf{v}|$ полагаем $\partial T/\partial |\mathbf{v}| = 0$ [16].

Таким образом, данная теория объясняет две основные экспериментальные зависимости расстояния между субграницами $\Lambda_{v\exp} \sim h$ [3]

и $\Lambda_{v\,\mathrm{exp}} \sim \sqrt{|\mathbf{v}|}$ [3]. Покажем, что эта формула может давать также и количественное согласие с экспериментами [3]. При $T=1{,}4\cdot10^3$К, $\Theta=Ka^3=5\cdot10^{-12}$ эрг ($K=5\cdot10^{11}$ эрг$\cdot$см$^{-3}$, $n^{-1}=a^3=10^{-22}$ см$^3$), $h=h_{\mathrm{exp}}=10^{-4}$ см [3] и $\Lambda_v=\Lambda_{v\,\mathrm{exp}}=2\cdot10^{-3}$ см [3] имеем из (16) $n/n_{v0}=n|\mathbf{v}|/g_v l=3\cdot10^3$. Используя значения $|\mathbf{v}|=|\mathbf{v}|_{\mathrm{exp}}=0{,}1$ мм$\cdot$с$^{-1}$, $l=l_{\mathrm{exp}}=1$ мм, отсюда имеем оценку скорости генерации вакансий $g_v=3\cdot10^{17}$ см$^{-3}\cdot$с$^{-1}$. Тогда из (17) при $h=5\cdot10^{-5}$ см получаем зависимость $\Lambda_v=3\cdot10^{-3}\sqrt{|\mathbf{v}|}$, где $[\mathbf{v}]$=мм/с. Эта кривая хорошо воспроизводит экспериментальную зависимость [3].

Оценим возможность выполнения условия $n_{v0}\gg n_{v\mathrm{cr}}$, использованного выше. Из (15) имеем, что оно эквивалентно условию $(D_v\tau)^{1/2}\gg\Lambda/2\pi$ или для $\tau=h^2/D_z$, где $D_z$ — коэффициент диффузии вдоль оси $z$, сводится к условию $(D_v/D_z)^{1/2}\gg\Lambda/(2\pi h)$. Это неравенство выполнено для экспериментальных значений $\Lambda_{\mathrm{exp}}$, $h_{\mathrm{exp}}$ [3], если $D_v\gg D_z$.

Таким образом, предложенный впервые в настоящей работе дефектно-деформационный механизм образования субграниц при лучевой зонной перекристаллизации полупроводниковых пленок может при разумных предположениях объяснить основные экспериментальные результаты. В этом механизме субграницы возникают в результате неустойчивости и соответствующего фазового перехода второго рода при превышении определенного критического значения плотности дефектов.

## ЛИТЕРАТУРА

[1] Smith H. I.//J. Cryst. Growth. 1983. **63**. N 3. [2] Givargizov E. I., Limanov A. B.//Microelectr. 1988. **8**. P. 273. [3] Geis M. W., Smith H. I., Tsaur B. Y. et al.//J. Electrochem. Soc. 1982. **129**, N 12. P. 2812. [4] Geis M. W., Chen G. K., Smith H. I. et al.//Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 1985. **35**. P. 575. [5] Geis M. W., Smith H. I., Silversmith D. J. et al.//J. Electrochem. Soc. 1983. **130**, N 5. P. 1178. [6] Bolling G. F., Fainstain D.//Phil. Mag. 1972. **25**, N 1. P. 45. [7] Емельянов В. И.//Труды IV Междунар. симп. по избранным проблемам статистической механики (Дубна, апрель 1988). Дубна, 1988. С. 128. [8] Емельянов В. И., Уварова И. Ф.//Металлофизика. 1989. **11**, № 5. С. 101. [9] Емельянов В. И., Володин Б. Л.//Квант. электроника. 1990. **17**, № 5. С. 648. [10] Алиева М. А., Емельянов В. И., Мирзоев Ф. Х., Шелепин Л. А.//Кр. сообщ. по физике ФИАН СССР. 1988. **10**. С. 43. [11] Косевич А. М. Физическая механика реальных кристаллов. Киев, 1981. [12] Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Теория упругости. М., 1987. [13] Тимошенко С. П., Войновский-Кригер С. Пластинки и оболочки. М., 1966. [14] Landolt-Bornstein. Berlin: Springer Verlag. 1980. V. 4. P. 49. [15] Geis M. W., Smith H. I., Chen C. K.//J. Appl. Phys. 1986. **60**. P. 1152. [16] Cline H. E.//J. Appl. Phys. 1983. **54**, N 5. P. 2683.

Поступила в редакцию
17.04.90