

C-5

金属薄膜の結晶化を目的としたレーザー加熱による熱応答シミュレーション

Thermal response simulation of laser heating for crystallization of metallic thin films

○望月大樹¹, 若林達也², 大家幸太², 吉川大貴³, 塚本新³

*Taiki Mochizuki¹, Tatsuya Wakabayashi², Kouta Daike², Hiroki, Yoshikawa³, Arata Tsukamoto³

Abstract : In preparation for laser annealing, a one-dimensional heat conduction equation was used to perform numerical simulations of the surface ($Z = 0$) temperature rise upon a single irradiation with a pulsed laser (pulse width: 10 ms, wavelength: 1064 nm, fluence: 4×10^4 mJ/cm²). Since FePt has optical and thermal properties very similar to Pt, Pt thin films were employed in the simulations. From the temperature response graph of the metallic thin film, it was confirmed that the surface ($Z = 0$) temperature increased up to approximately 700 °C. Furthermore, the 10 ms laser irradiation suggests that heating up to the ordering temperature is achievable.

1. 背景

$L1_0$ 結晶は高い磁気異方性を発現するため、高密度磁気記録媒体への応用が期待される。その中でも $L1_0$ -FePt は高い磁気異方性かつ高いキュリー温度を有するため、次世代高密度磁気記録材用として注目されている。FePt は $L1_0$ 規則合金化に約 600 °C 以上の加熱が必要になる^[1]。レーザーアニールは、 $\mu s \sim ms$ の急速加熱・冷却を可能とし、基板損傷の低減や空間・時間的制御といった利点を有する^[2]。レーザー照射下では試料内での温度分布が不均一となるため、薄膜内温度分布や伝熱を実験検討で直接評価することは難しい。また、レーザーアニールに伴う試料内の熱応答を明らかにすることは、金属層部位を規則化温度にまで到達・制御する条件を検証する上で重要である。そこで本検討では、パルスレーザーアニールを想定して、FePt と光学的・熱的特性が近い Pt 薄膜を対象に熱伝導方程式に基づく数値シミュレーションによるインパルス応答特性の検討を行った^[3]。

2. 実験方法

本研究では、単一パルスレーザー照射時における Pt 薄膜の熱応答を一次元熱伝導方程式に基づき数値的に解析した。対象は Pt (10 nm)/ 界面層 (IF) (1 nm)/ Si 基板 (500 μm) から成る三層構造であり、界面層は界面熱抵抗 R_k を薄膜等価モデルとして導入し、厚さ h_{if} とし、その熱伝導率を $k_{int} = h_{if} / R_k$ とすることで界面伝熱を再現した。レーザーの光吸収は Beer-Lambert 則に従い

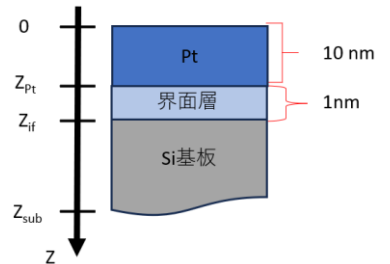


Fig. 1 Film structure

$$I(z, t) = I_0 \cdot (1 - R) \cdot \alpha \cdot \exp(-\alpha z) \cdot f(t), \quad f(t) = \frac{1}{2} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{t}{t_{sm}} \right) - \operatorname{erf} \left(\frac{t - t_p}{t_{sm}} \right) \right] \quad (1)$$

として計算し、これを体積発熱項 $q_v(z, t)$ として熱伝導方程式に組み込んだ。ここで α は吸収係数、 R は膜反射率である。入射レーザーはパルス幅 10 ms の矩形パルス (立ち上がり・立ち下がり 0.2 ms) を実装している。熱伝導方程式は以下の式 (2) で表される。

$$\frac{\rho c_p (\partial T)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(k \frac{\partial T}{\partial z} \right) + q_v(z, t) \quad (2)$$

ここで ρ, C_p, k はそれぞれ密度・比熱・熱伝導率である。境界条件として、表面 ($z=0$) には対流・放射損失を組み合わせた Robin 条件を適用し、裏面 ($z=Z_{sub}$) には基板と外部との熱接触を模擬する有限熱伝達境界を与えた。初期温度を 300 K と設定した。また反射率は Table1 の屈折率、消衰係数を用いて(3)の式のように計算し、 $R=0.43$ とした。

$$R = \frac{(1 - n)^2 + k^2}{(1 + n)^2 + k^2} \quad (3)$$

1:日大理工・学部・電子 2:日大理工・院(前)・電子 3:日大理工・教員・電子

Table 1 Thermophysical and Optical Properties of Pt Thin Films (at ~300 K, $\lambda \approx 1064$ nm)

屈折率 {n}	消衰係数 {k}	熱伝導係数 : $h_{if}\{W/m \cdot k\}$	フルエンス:F {mJ/cm ² }	有効吸収係数
2.1×10^4	133	72	4×10^4	1.05×10^8

Table 2 Thermophysical and Optical Properties of Si Films and Thermal Boundary Resistance (at ~300 K, $\lambda \approx 1064$ nm)

熱伝導率 {W/m · k}	比熱容量 {J/kg · K}	密度 {kg/m ³ }	界面熱抵抗 {m ² K/W}
80	700	2330	6.7×10^{-9}

3. 実験結果.

3.1 温度時間分布

Fig. 2 に縦軸を時間, 横軸を深さ方向とした温度時間分布を示す. 金属薄膜から約 100 μm のシリコン層まで急激な温度上昇が形成され, その後, 熱が膜厚方向に伝搬されることがわかる. 0~10ms における温度時間分布では約 100 μm まで同様の温度変化が見られた. また 100 μm 付近では急激な温度勾配が形成され, それ以上の深さでは, 急激な温度上昇は見られなかった. その後 10ms 以降では時間とともに深さ方向に熱拡散していき, 30ms ではどの深さでも 400 $^{\circ}\text{C}$ 付近に落ち着くことがわかる. また, 深さ方向に熱が散逸するため, Pt に熱が保温されず過度な温度上昇などを抑えられる可能性がある.

3.2 金属薄膜表面(Z=0)における熱応答

Fig. 3 では金属薄膜の温度上昇に注目するために深さ(Z=0)における表面温度変化のグラフを示す. 表面温度はパルスに同期して上昇し, ピーク温度が 690 $^{\circ}\text{C}$ となった. このピーク温度は, L1₀-FePt 形成に必要な規則化温度に相当する温度域まで上昇することが確認できる. また, レーザー照射後 10ms において 300 $^{\circ}\text{C}$ 付近までは急激に温度が低下し, それ以降は徐々に温度が低下していく. これは深さ方向に熱が散逸されることが要因の一つであると考えられる. これらにより金属薄膜の規則化温度に到達可能な条件が存在することを見出した.

4. まとめ

本検討ではパルスレーザーアニールを想定してインパルス応答特性評価のため, パルスレーザー(パルス幅 10ms, 波長 1064 nm, F= 4×10^4 mJ/cm²)を 1 回照射した際の温度上昇や温度分布を確認することを目的とし, 数値シミュレーションを用いて検討を行った. 金属薄膜に対する温度応答のグラフを用いることで, 表面(Z=0)の最大温度が約 700 $^{\circ}\text{C}$ まで上昇することが確認した. また, 熱拡散が数 ms で進行することを確認した. 結果として数値シミュレーションを用いることで, 10ms の単一パルスレーザー照射により規則化温度まで加熱可能であることを示唆した.

5. 参考文献

[1] Itabashi, Ohtake, Ouchi, Kirino, Futamoto, "Preparation of L1₀ ordered FePd, FePt, and CoPt thin films with flat surfaces on
 [2] Inaba et al., "The FePt L1₀ Phase Transformation in Thin Films using Multiple Laser Pulsing", J. Appl. Phys. 107, 053507 (2010)
 [3] Inaba et al., "The FePt L1₀ Phase Transformation in Thin Films using Multiple Laser Pulsing", J. Appl. Phys. 107, 053507 (2010)
 Inaba, H., et al. "Time-Temperature-Transformation Measurements of FePt Thin Films in the Millisecond Regime Using Pulse Laser Processing." Japanese Journal of Applied Physics, 48(8), 08JB01 (2009).

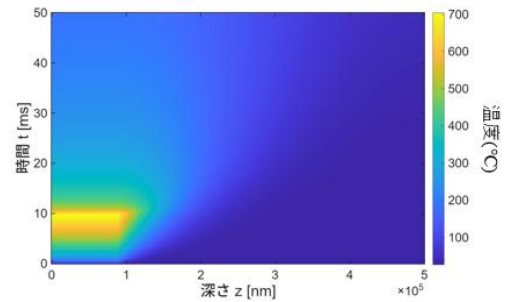


Fig. 2 1D Temperature Heatmap at t=10ms (X-Z)

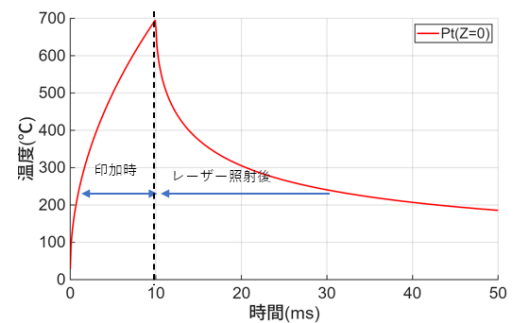


Fig. 3 Temperature responses at the surface