

エキシマ・レーザ・アニール法により形成された poly-Si 薄膜結晶成長の遷移領域に関する検討

河本直哉 (電気電子工学科)

阿部寿 (三洋電機株式会社マイクロエレクトロニクス研究所)

田口亮平 (電気電子工学専攻)

松尾直人 (電気電子工学科)

納田朋幸 (三洋電機株式会社マイクロエレクトロニクス研究所)

浜田弘喜 (三洋電機株式会社マイクロエレクトロニクス研究所)

Study of Transition Stage of Crystal Growth for the poly-Si Prepared by Excimer Laser Annealing Method

Naoya KAWAMOTO (Dept. Electric. & Electron. Eng.)

Hisashi ABE (Microelectronics Research Center, SANYO Electric Co., Ltd.)

Ryouhei TAGUCHI (Dept. Electric. & Electron. Eng.)

Naoto MATSUO (Dept. Electric. & Electron. Eng.)

Tomoyuki NOUDA (Microelectronics Research Center, SANYO Electric Co., Ltd.)

Hiroki HAMADA (Microelectronics Research Center, SANYO Electric Co., Ltd.)

The crystal growth mechanism for the poly-Si prepared by excimer laser annealing method is studied from a viewpoint of the transition stage between the solid phase crystallization for the low energy density and the nucleation and growth from the super cooled liquid for the high energy density. The preferred orientation, the crystallinity and the surface morphology are measured and the characteristics of the disk-shaped grain are clarified. Furthermore, the total mechanism of the recrystallized poly-Si is discussed.

Keywords: ELA, SPC, SCL, poly-Si grains, disk-shaped grain, crystal growth mechanism

はじめに

エキシマ・レーザ・アニール(excimer laser anneal)による低温プロセス多結晶シリコン(polycrystalline Si, poly-Si)膜の結晶成長は、過冷却液体(super cooled liquid, SCL)からの固体化により説明されている[1]。しかし、我々は75~250mJ/cm²の比較的小さなエネルギー密度のレーザを照射した場合において、アモルファス Si(amorphous Si, a-Si)の溶解後、poly-Si が形成された後も、poly-Si が成長を続けている事

実から、poly-Si の結晶性にエネルギー密度、ショット数が与える効果を調べることにより、転移論に基づく固相成長(solid phase crystallization, SPC)による機構を提案してきた[2]。また、250~350mJ/cm²においては、SPCからSCLへの結晶成長の遷移領域においてディスク状結晶(disk shaped grain)が観察された[3]。本研究においては、遷移領域において観察されるディスク状結晶に着目することにより遷移領域における結晶成長機構を議論する。

実験方法

a-Si を、 Si_2H_6 を原料ガスとした減圧化学気相蒸着法 (low pressure chemical vapor deposition, LPCVD) により 400°C において 100nm 成長させた後、真空中で 1 時間加熱することにより脱水素化処理をおこなった。その後、a-Si 基板表面に KrF エキシマレーザを室温でパルス照射することにより再結晶化をおこなった。照射時間は、 23ns (full width at half maximum, FWHM 値)、パルスは 8~100 ショット、エネルギー密度は $200\sim 400\text{mJ}/\text{cm}^2$ 、ビームスポットは $5.9 \times 5.9\text{mm}$ および $6.5 \times 6.5\text{mm}$ の方形ビームを用いた。

poly-Si 薄膜の評価は走査型電子顕微鏡 (scanning electron microscopy, SEM)、ラマン分光法 (Raman spectroscopy)、X 線回折法 (X-ray diffraction method, XRD)、透過電子顕微鏡 (transmission electron microscopy, TEM) および、原子間力顕微鏡 (atomic force microscopy, AFM) を用いた。なお、SEM 観察は、poly-Si 薄膜にセコエッチング (secco etching) を施した後におこなった。

実験結果と考察

Fig. 1 に、ELA の各照射エネルギー密度における Si (111) の XRD 強度とショット数の関係を示す。 $200\sim 300\text{mJ}/\text{cm}^2$ においては、ほぼショット数が大きくなるにつれて Si (111) の XRD 強度は大きくなっているが、 350 および $400\text{mJ}/\text{cm}^2$ においては値が揺らいでいる。

Fig. 2 に、ELA の各照射エネルギー密度におけるラマン強度とショット数の関係を示す。Fig. 2 は、Fig. 1 に示す Si (111) の XRD 強度とほぼ同じ挙動をしていることが分かる。

Fig. 3 に、SEM と AFM による poly-Si 表面上におけるディスク状結晶を示す。いずれもエネルギー密度 $250\text{mJ}/\text{cm}^2$ のレーザを 8 ショット照射したものの表面である。図中、SEM により観察されたディスク状結晶は「D」と示した。ディスク状結晶は AFM においても観察され、ディスクのエッジ部分が盛り上がっていることが観測された。これは、ディスク状結晶が中心に核を持っており、中心の核から外側へ成長しているためであると考えられる。図中、ディスク状結晶のエッジ部分を矢印により指し示す。

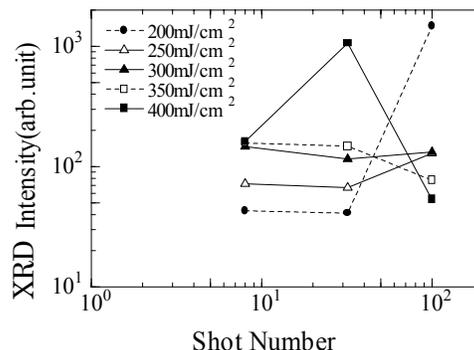


Fig.1 Relationship between the XRD intensity of Si(111) and the shot number for energy density of 200 to $400\text{mJ}/\text{cm}^2$

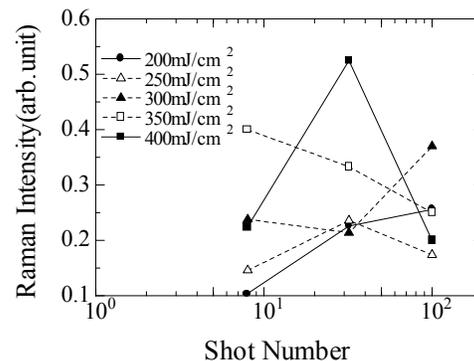


Fig.2 Relationship between the Raman intensity and the shot number for energy density of 200 to $400\text{mJ}/\text{cm}^2$

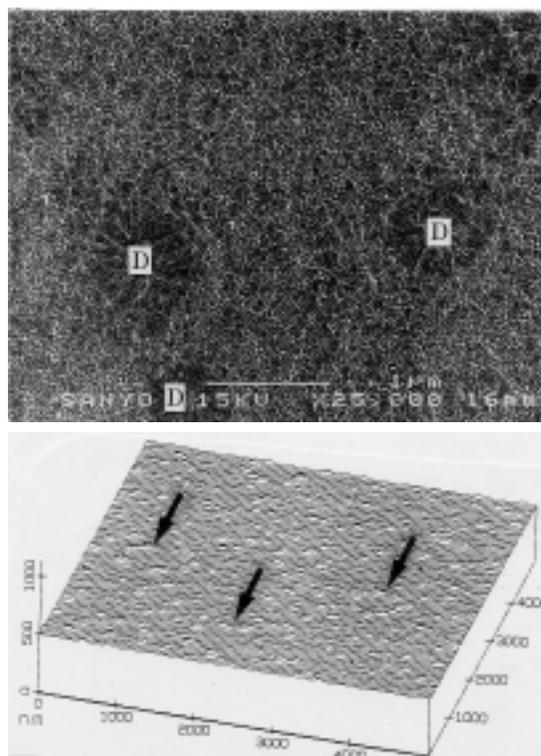


Fig.3 SEM photograph and AFM image for the condition of $250\text{mJ}/\text{cm}^2$ and 8shots

本実験では、 $250\sim 350\text{mJ/cm}^2$ の ELA の後にディスク状結晶が観測されているが、 178mJ/cm^2 の ELA の後、SPC の処理をおこなうことによりディスク状結晶が形成された例も報告されている[4]。

Fig. 4 (a),(b)に、エネルギー密度 250mJ/cm^2 、32 ショット照射した場合の poly-Si 断面の TEM 写真を示す。写真に示すように、a-Si は、すべて poly-Si になっていることが分かる。

Fig. 5 に、レーザ・エネルギー密度 $250\sim 350\text{mJ/cm}^2$ における表面粗さ Ra のショット数依存性を示す。レーザ・エネルギー密度 250 および 300mJ/cm^2 における表面粗さ Ra は、ショット数が増えるにしたがって小さくなっていることが分かる。これは、ショット数が増加するにしたがって、ディスク状結晶の占める面積の割合が多くなり、表面の凹凸が少なくなっているからであると考えられる。また、 350mJ/cm^2 においては、ほとんどディスク状結晶で占められていることが SEM 写真で確認されている。Ra がショット数にしたがって大きくなっている原因はディスク状結晶の大きさがショット数につれて小さくなることによるものと考えられる。

Fig. 6 に、エネルギー変化に伴う結晶成長機構の変化についての模式図を示す。この図は、SPC による結晶成長は黒色で、SCL による結晶成長は白色で現されている。また、SPC と SCL の遷移領域では白黒の濃淡でその割合が現している。たとえば、あるエネルギー密度においては、ショット数が多くなるにしたがって SCL による結晶成長の領域が多くなっていき、ついには、すべてが SCL による領域となる。また、同じショット数においても、エネルギー密度を大きくしていくと同じ現象を見ることが出来る。

Fig. 7 に、遷移領域における結晶成長の模式図を示す。レーザ・エネルギーのゆらぎによる表面温度は poly-Si の融点付近でばらつく。融点より高い部分においては、poly-Si は SCL となっておりディスク状結晶の核が SCL の中心に形成される。また、融点より低い部分では、SPC が進行する。Si 表面へ照射された総エネルギーは、エネルギー密度とショット数の積と考えられ、総エネルギーが増えるにしたがって、SCL の割合はゆらぎが大きくなることによって多くなると考えられる。よって、エネルギー密度、もしくはショット数が大きくなるにした

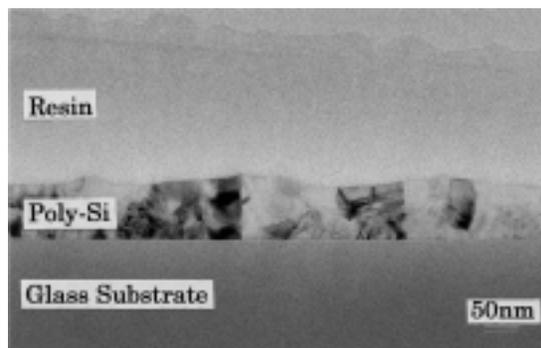


Fig.4 (a)Cross section TEM photograph of the poly-Si for 250mJ/cm^2 , 32shots

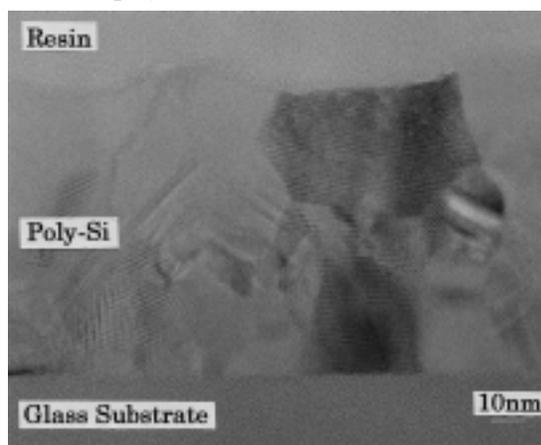


Fig.4 (b)Cross section TEM photograph of the poly-Si for 250mJ/cm^2 , 32shots

がって、ディスク状結晶の割合が大きくなると考えられる。

まとめ

ELA の各照射エネルギー密度における Si (111) の XRD 強度とショット数の関係より、 $200\sim 300\text{mJ/cm}^2$ においては、ほぼショット数が大きくなるにつれて Si (111) の XRD 強度は大きくなっているが、 350 および 400mJ/cm^2 においては値が揺らいでいる。これは、ラマンによる結果とほぼ一致した。

ディスク状結晶の AFM による結果から、ディスクエッジの部分が盛り上がっていることが明らかになった。これは、ディスク状結晶が中心に核を持っており、中心の核から外側へ成長していることを示唆する。

遷移領域に相当するエネルギー密度のレーザを照射した poly-Si 表面は、エネルギー密度のゆらぎにより表面温度が poly-Si の融点付近で

ばらつく。その融点以上の温度となった poly-Si の部分が、SCL となり、融点以下の部分は、SPC が進行すると思われる。ディスク状結晶は、SCL となった poly-Si 中に核が生成され、この核を中心としてディスク状結晶が成長する。

このディスク状結晶は、高いエネルギー密度のレーザを照射した際に現れる微小結晶と起源を同一とし、高エネルギーのレーザを照射した際に生成される微小結晶の基本的核を拡大したものであると考えられる。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、三洋電機マイクロエレクトロニクス研究所所長吉年慶一博士には有益なご助言を賜りました。紙面を持ちまして感謝を申し上げます。

本研究の一部は(財)宇部興産学術振興財団ならびに(財)赤井録音録画技術研究助成会により遂行されました。

参考文献

[1]S.R.Stiffer, P.V.Evans and A.L.Greer, Actra Metal Mater., **40**(1992)1617.
 [2]N.Matuo, Y.Aya, T.Kanamori, T.Nouda, H.Hamada and T.Miyoshi, Jpn. J. Appl. Phys., **39**(2000)351.
 [3]松尾直人、河本直哉、田口亮平、阿部寿、納田朋幸、浜田弘喜, 信学技報, ED2000-79, SDM2000-79(2000) 19.
 [4]Y.Ikeda and T.Noguchi, Proc. 44th Symp. Semiconductor and Integrated Circuit Technology, 1993, 99.187-192.

(平成 12 年 12 月 27 日受理)

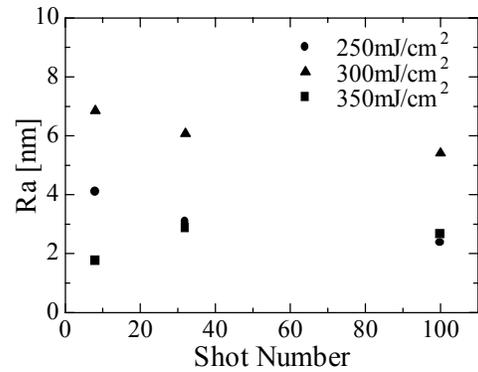


Fig.5 Relationship between the surface average roughness (Ra) and the shot number for energy density of 250 to 350mJ/cm²

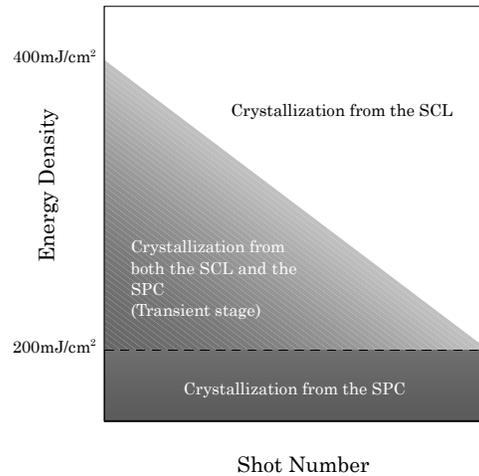


Fig.6 Schematic figure for the change of crystal growth mechanism from low to high energy density

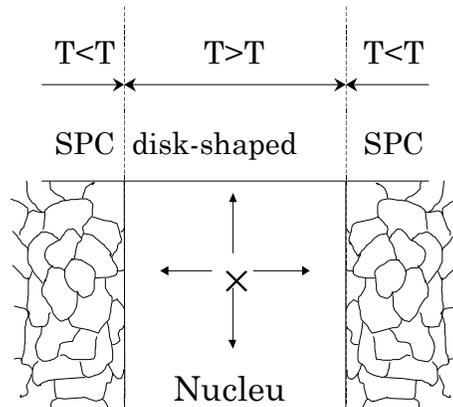


Fig.7 Schematic model of the crystal growth in the transient area