

Title	レーザー照射自己誘導エネルギー強度分布によるシリコン薄膜の周期的構造形成およびその結晶性に関する研究
Author(s)	可貴, 裕和
Citation	
Issue Date	2005-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10119/2172">http://hdl.handle.net/10119/2172</a>
Rights	
Description	Supervisor:堀田 将, 材料科学研究科, 博士

# レーザー照射自己誘導エネルギー強度分布による シリコン薄膜の周期的構造形成およびその結晶性に関する研究

堀田研究室 240005 可貴裕和

## 背景

フレキシブル性を有するシートディスプレイが提案され、さらに、画素の駆動のみならず、ディスプレイを構成するすべての電子回路を1つのパネル上に集積するシステムオンパネル (SOP) が注目されている。これらの基幹技術として、低温での多結晶シリコン (poly-Si) 薄膜トランジスタ (TFT) の作製が挙げられる。poly-Si 薄膜を得る方法として、基板上に堆積した非晶質シリコン (a-Si) 薄膜にナノ秒オーダーのパルス幅を持つパルスレーザーを照射し、瞬間的に a-Si を熔融、結晶化させ、実効的に低温で poly-Si 薄膜を作製するパルスレーザーアニール (PLA) 法がある。しかし、現在の PLA 法では、熔融結晶化時の結晶核発生位置を制御できないため、キャリアの移動を妨げる結晶粒界が poly-Si 膜中にランダムに形成され、TFT の移動度を低下させ、各素子間の特性が不均一になってしまうという問題がある。そのため、付加的な光学素子やプロセスを用いて、Si 薄膜表面に平行な方向に温度分布を形成させ、結晶化を横方向に進行させることにより、poly-Si 薄膜の結晶粒界位置を制御するための種々の方法が提案されている。一方、試料に直線偏光レーザーを照射することによって、入射レーザーの電界ベクトルに対して垂直な方向に、空間周期的な表面構造が自発的に形成され、その周期 $\Lambda$ は、*p*-偏光入射の場合、Rayleigh の回折条件式 $\lambda/n_0(1 \pm \sin\theta) \cdots (1)$  (ここで、レーザー波長 $\lambda$ 、試料表面に対して垂直方向からのレーザーの入射角度 $\theta$ 、雰囲気媒質の屈折率 $n_0$ ) に従い、*s*-偏光入射の場合、レーザーの入射角度に依存せず、 $\lambda/n_0 \cdots (2)$ に従うことが、1970~80年代にかけて、半導体、金属、有機物などの試料に対して報告されている<sup>1)</sup>。これは、(1)、(2)式の条件で、入射波と周期的表面構造すなわち回折格子による回折波との間に干渉が生じ、それによって、入射ビーム強度が空間周期的に変調され、照射試料表面において、空間周期的なエネルギー強度分布が生じるためであると考えられている<sup>2)</sup>。すなわち、この現象を poly-Si 薄膜の熔融結晶化に応用することにより、直線偏光レーザー照射のみという最も簡便な方法で、Si 薄膜表面に温度分布を形成させ、結晶粒界位置を制御することが可能になると考えられる。

## 目的

本研究の目的は、PLA 法のエネルギー源であるレーザー光に直線偏光 Nd:YAG パルスレーザーを用い、ガラス基板上に堆積した a-Si 薄膜を熔融させ、それと同時に直線偏光レーザーによって、試料表面に自発的に誘導される周期的エネルギー強度分布により、(1)式で表される周期幅を持つ周期的結晶粒界を有する poly-Si 薄膜を作製することである。また、本研究を通して、薄膜試料における周期的エネルギー強度分布と試料表面形状の関係を明らかにする。

これらのことを踏まえ、まず、バルク試料および薄膜試料に対して、直線偏光レーザーによって発生する周期的エネルギー強度分布に関する検討を行う。その後、入射角度依存性を詳細に調査することにより、本手法における結晶粒界幅の決定要因、熔融結晶化による結晶成長過程およびその表面形態形成過程に関する定量的な評価を行う。最後に、周期的エネルギー強度分布の理論計算結果および実験結果に基づき、より安定に周期的結晶粒界を形成する方法を述べるとともに、本手法の応用法として、レーザー照射による Si 細線の作製法を提案する。

## 実験

本研究では、レーザーに直線偏光 Nd:YAG パルスレーザーを用いて、Si 薄膜に対する空間周期的なエネルギー強度分布の影響に関する実験を行った。基板には、Pyrex ガラス、石英もしくは、膜厚 30 nm の SiO<sub>2</sub> 層を有する熱酸化 Si を使い、a-Si 膜厚は 60 nm または 10 nm とした。また、レーザー照射はすべて真空チャンバー内で行った。

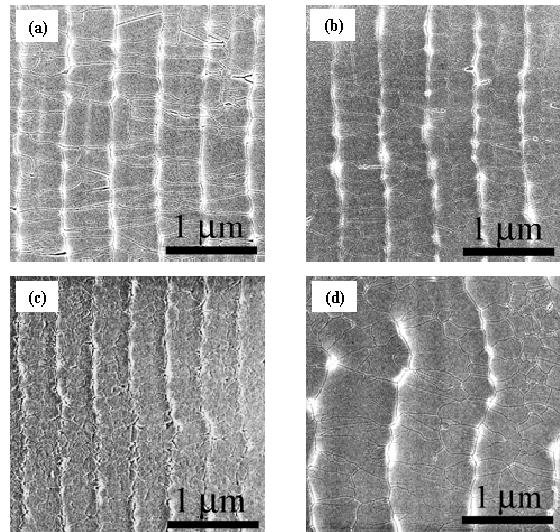
## 結果と考察

### 1) 周期的エネルギー強度分布 (学位論文 2 章)

本研究では、まず、周期的表面構造を持った Si に対して発生する周期的エネルギー強度分布を理論計算により見積もった。その結果、周期的表面構造の格子ベクトルと  $\vec{k}$  と入射レーザーの電界ベクトル  $\vec{E}$  が平行な場合、Rayleigh の回折条件式(1)から見積もられる周期幅付近に周期的エネルギー強度分布の振幅のピークが観測され、その大きさは  $h$  の増加とともに大きくなることが分かった。一方、 $\vec{k}$  と  $\vec{E}$  が垂直な場合、明確なピークが観測されないことが分かった。以上の結果から、 $\vec{k}$  と  $\vec{E}$  が平行な場合、確かに Rayleigh の回折条件式(1)に相当する周期幅を持つ周期的エネルギー強度分布が発生し、その振幅は周期的表面構造の振幅  $h$  に比例すること、また、入射角度を変化させ、斜め入射を行った場合、周期的表面構造と周期的エネルギー強度分布との間に位相差が生じること、さらに  $\vec{k}$  と  $\vec{E}$  が垂直な場合、周期的なエネルギー強度分布が発生しにくいことが分かった。

### 2) 結晶粒界周期幅の入射角度依存性 (学位論文 5 章)

Figs. 1(a)および1(b)にレーザーエネルギー密度  $F = 150 \text{ mJ/cm}^2$ 、入射角度  $\theta_i = 0$ 、照射パルス数  $N = 10$  および 100 で作製した試料の Secco エッチングにより結晶粒界を顕在化させた後の走査型電子顕微鏡 (SEM) 像を示す。また、Figs. 1(c)および1(d)に、 $p$ -偏光入射で、 $F = 150 \text{ mJ/cm}^2$ 、 $\theta_i = 25^\circ$ 、 $N = 10$  および 100 で作製した試料の Secco エッチング後の SEM 像を示す。Table 1 には、Rayleigh の回折条件式(1)から予想される周期幅  $\Lambda$  の計算値と Fig. 1 の SEM 像から見積もられる周期幅  $\Lambda$  についてまとめたものを示す。Table 1 から、紙面縦方向に周期的結晶粒界が発生していることが確認でき、直線偏光レーザー照射により、結晶粒界位置を制御することができることが分かる。また、入射



**Fig. 1** Secco エッチング後の SEM 像  
(a)  $\theta_i = 0$ 、 $N = 10$ 、(b)  $\theta_i = 0$ 、 $N = 100$   
(c)  $\theta_i = 25^\circ$ 、 $N = 10$  および (d)  $\theta_i = 25^\circ$ 、 $N = 100$

**Table 1** 周期的結晶粒界周期幅の入射角度依存性

入射角度	周期幅 $\Lambda$	
	計算値	実験値
0	532 nm	510 - 530 nm (10 パルス) 510 - 530 nm (100 パルス)
25°	374 nm ( $= \lambda / (1 + \sin 25^\circ)$ ) 921 nm ( $= \lambda / (1 - \sin 25^\circ)$ )	390 - 410 nm (10 パルス) 880 - 1060 nm (100 パルス)

角度を変化させることにより、周期的結晶粒界の周期幅 $\Lambda$ が垂直入射の場合と異なり、その周期幅 $\Lambda$ は、 $N = 10$  では、(1)式で示した Rayleigh の回折条件式の $\lambda/n_0(1+\sin\theta_i) \approx 370 \text{ nm}$  に従い、 $N = 100$  においては、 $\lambda/n_0(1-\sin\theta_i) \approx 900 \text{ nm}$  に従っており、照射パルス数に依存していることが確認できる。この周期幅 $\Lambda$ のパルス数依存性を説明するために、熔融結晶化シミュレーションを用いて解析を行った。その結果、結晶粒界周期幅のパルス数依存性の原因は、(i)周期幅 $\lambda/n_0(1+\sin\theta_i)$ における周期的エネルギー強度分布の振幅が、周期幅 $\lambda/n_0(1-\sin\theta_i)$ に比べて大きい、(ii)周期的表面凹凸の存在によって入射波と回折波が散乱されてしまい、周期的エネルギー強度分布の振幅が減少する、(iii)Si 熔融時にその表面張力により表面形状が変化し、それに伴い、Si 熔融時は周期的エネルギー強度分布の振幅がさらに減少する、および、(iv)Si 固化の際に形成される表面凹凸高さが周期幅に比例しているためであることが分かった。

### 3) 熔融結晶化への弾性波の影響 (学位論文 6 章)

本研究で用いている周期的エネルギー強度分布による結晶粒界位置制御法では、垂直入射の場合、粒界位置を適切に制御するために、3~5 程度の照射パルス数が必要である。一方、周期的エネルギー強度分布の振幅は、上述したように周期的表面構造の振幅に比例していることが分かっている。すなわち、十分な高さを持つ周期的表面構造をレーザー照射前から存在するようにできれば、より低パルス照射で結晶粒界位置を適切に制御できると考えられる。そこで、擬似的に表面凹凸高さを増加させる方法として、結晶化用レーザーとは異なるレーザーを熔融場所から離れた位置に照射する、あるいは超音波振動子を用いて、結晶化用レーザー照射前に、試料に瞬間的な衝撃を加え、試料表面に弾性波を発生させる方法を提案し、粒界位置を適切に制御するために必要な照射パルス数を、前者の場合 2 パルスまで、後者の場合 1 パルスまで低減することができることが分かった。

### 4) 自己誘導エネルギー強度分布を用いたシリコン細線の作製 (学位論文 7 章)

基板に熱酸化 Si ( $\text{SiO}_2$  膜厚 30 nm) を用いて、堆積する Si 薄膜の膜厚を 10 nm と非常に薄くし、レーザーエネルギー密度  $F = 110 \text{ mJ/cm}^2$  とし、パルス数  $N = 6000$  とすることにより、直線偏光レーザー照射によって発生する周期的エネルギー強度分布の極小部に熔融 Si が線状に凝集し、Fig. 2 の SEM 像に示されるように、周期幅約 520 nm でライン幅約 200 nm のライン&スペースパターンを有する線状 Si 薄膜 (Si 細線) を作製することが分かった。また、Fig. 2 と透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察の結果をもとに、Si 細線の形成モデルを提案した。その後、この形成モデルをもとに石英基板を用いて、膜厚 10 nm の a-Si 薄膜に対して同様の実験を行い、Si 細線の作製を試みたところ、周期的表面構造の格子ベクトル  $\vec{k}$  と入射レーザーの電界ベクトル  $\vec{E}$  が平行となる表面構造だけではなく、本来観測されないと考えられていた  $\vec{k}$  と  $\vec{E}$  が垂直となる表面構造も観測されることが分かった。この  $\vec{k}$  と  $\vec{E}$  が垂直となる表面構造の形成原因については、現在のところ詳しく分かっていないものの、斜め入射を用いた場合、上述したように周期的表面構造と周期的エネルギー強度分布との間に位相差が発生することから、 $\vec{k}$  と  $\vec{E}$  が垂直となる表面構造を抑制させ、 $\vec{k}$  と  $\vec{E}$  が平行となる表面構造だ

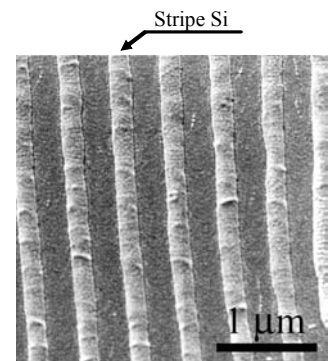


Fig. 2 熱酸化 Si 基板上に作製した Si 細線の SEM 像

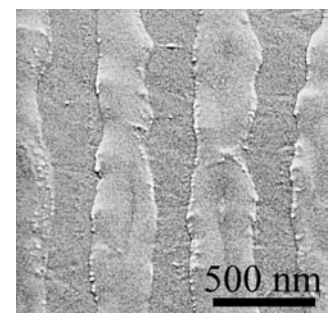


Fig. 3 石英基板上に作製した Si 細線の SEM 像

けを形成させることができるのではないかと考え、*s*-偏光の斜め入射を用いて、実験を行った。その結果、エネルギー密度  $F = 70 \text{ mJ/cm}^2$ 、パルス数  $N = 3200$ 、入射角度  $\theta = 12^\circ$  とすることにより、基板の熱伝導率が Si に比べて低いことなどの理由から、熱酸化 Si 基板ほどきれいではないものの、Fig. 3 の SEM 像に示されるように周期幅約 520 nm でライン幅約 300 nm の線状 Si 薄膜を作製することができることが分かった。

## 参考文献

- 1) A. E. Siegman and P. M. Fauchet, IEEE J. Quantum Electron. **22**, 1384 (1986).
- 2) Z. Guosheng, P. M. Fauchet and A. E. Siegman: Phys. Rev. B **26**, 5366 (1982).

## 論文目次

1章 序論	...	1
2章 自己誘導エネルギー強度分布	...	21
3章 自己誘導エネルギー強度分布によるシリコン薄膜の熔融結晶化成長	...	40
4章 試料の作製法および評価法	...	61
5章 結晶粒界周期幅の入射角度依存性	...	71
6章 熔融結晶化への弾性波の影響	...	86
7章 自己誘導エネルギー強度分布を用いたシリコン細線の作製	...	99
8章 結論	...	116

## 業績

- 1) Hirokazu Kaki, Yasunori Nakata and Susumu Horita 「Numerical Analysis for Lateral Grain Growth of Poly-Si Thin Films Controlled by Laser-Induced Periodic Thermal Distribution」 Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **715**, pp. 211-216 (2002).
- 2) Yasunori Nakata, Hirokazu Kaki and Susumu Horita 「Influence of the beam irradiation condition with oblique incidence on crystallization of an Si film by a linearly polarized pulse laser」 Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **715**, pp. 199-204 (2002).
- 3) Hirokazu Kaki, Yasunori Nakata and Susumu Horita 「Study on Grain Boundary Formation in a Si Film Crystallized by Laser Induced Periodic Temperature Distribution with a High Incident Angle」 Solid State Phenomena **93**, pp. 355-360 (2003).
- 4) Yasunori Nakata, Hirokazu Kaki and Susumu Horita 「Influence of the Beam Irradiation Conditions on an Si Film Melting-Crystallized by a Nd:YAG Pulse Laser Beam with Linear Polarization」 Jpn. J. Appl. Phys. **43**, pp. 2630-2635 (2004).
- 5) Hirokazu Kaki, Takehiko Ootani and Susumu Horita 「Formation of periodic grain boundary in an Si thin film crystallized by a linearly polarized Nd:YAG pulse laser with an ultra sonic oscillator」 Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **808**, pp. 283-288 (2004).
- 6) Hirokazu Kaki and Susumu Horita 「Periodic Grain Boundary Formation in a Poly-Si Thin Film Crystallized by Linearly Polarized Nd:YAG Pulse Laser with an Oblique Incident Angle」 J. Appl. Phys. **97**, pp. 014904 1-9.