

## 論 文

## 電流加熱結晶化法によるシリコン薄膜の結晶化

安藤 伸行<sup>†</sup>      大北 圭介<sup>†</sup>      鮫島 俊之<sup>†a)</sup>

## Crystallization of Silicon Thin Films by Electrical Current Induced Joule Heating Method

Nobuyuki ANDOH<sup>†</sup>, Keisuke OHKITA<sup>†</sup>, and Toshiyuki SAMESHIMA<sup>†a)</sup>

あらまし 電流加熱結晶化法によりシリコン薄膜の結晶化を試みた。膜厚 60 nm の薄膜シリコンを用いた。発生するジュール熱強度が一様である単純形状のシリコンストリップを用いるとストリップ端に 4  $\mu\text{m}$  長の結晶粒が形成された。更に大結晶粒を形成するためにテーパ形状のシリコンストリップを用い、発生するジュール熱強度に空間的变化を形成させた。17  $\mu\text{s}$  間シリコンに電流を流すことにより、13  $\mu\text{m}$  程度の結晶粒を形成した。透過型電子顕微鏡観察やラマン散乱スペクトルから、得られた結晶粒はアモルファス成分を含まない、単結晶であることがわかった。また、結晶化後の薄膜の表面は平坦であることがわかった。

キーワード 横方向結晶化, ジュール熱, 薄膜シリコン, テーパ形状

## 1. ま え が き

多結晶シリコン薄膜は薄膜トランジスタへの応用において非常に注目されている。これまで、様々な手法で短時間大粒径化が試みられている [1]~[3]。我々は多結晶シリコン薄膜の形成法として電流加熱結晶化法を開発し、薄膜結晶シリコンの大粒径化を試みた [4]~[6]。この方法は、結晶化速度、冷却速度、固化時間などを電気回路で簡単に制御することができる。今まで、この短時間電流加熱法により、数  $\mu\text{m}$  の結晶粒形成が確認されている。また結晶粒と結晶粒界の電気的特性の解析の結果、欠陥密度が低いことがわかっている。

本論文では、短時間電流加熱法によるシリコンの結晶化についてこれまで得られた成果について述べる。更に本方法を用いて大結晶粒を得るために、横方向温度勾配の形成による横方向結晶化について議論する。

## 2. 実 験

アモルファスシリコン薄膜を減圧化学気相堆積法により、ガラス基板上に 60 nm 堆積させた。シリコン薄

膜を横幅 30  $\mu\text{m}$  のストリップ形状にパターンニングした。パターンニングされたシリコンストリップ上に電流供給用の電極として Al/Cr の 2 層構造の金属膜を形成した。Al と Si の拡散を防ぐために Cr を用いた。シリコンストリップの形状は図 1 挿入図に示すように単純形状とテーパ形状のものを用いた。単純形状のものはシリコンの電気伝導率が一様ならば、発生するジュール熱強度も一様となる。テーパ形状のものは、ストリップ長の短い領域では電気抵抗が小さくなるため、大電流が流れ、発生するジュール熱強度は大きくなる。一方のストリップ長の長い領域では発生するジュール熱強度は小さくなる。したがって、シリコンストリップの幅方向にジュール加熱強度の空間的分布を形成することができる。シリコンストリップの幅方向にヒートフローが生じ、温度こう配が生じる。このようにストリップ幅方向に温度こう配を形成することにより大結晶粒の形成を試みた。

図 1 に電流加熱結晶化法の概略図を示す。シリコンストリップにロード抵抗  $R_L$  を直列に、シリコンへの電流供給のためコンデンサ C を並列に接続した。直流電源よりコンデンサの充電をまず行う。このとき、固相シリコンは高抵抗のため電流はほとんど流れない。シリコンストリップの抵抗を低減させ電流を流すためにシリコンストリップにパルス幅 5 ns のレーザを照射さ

<sup>†</sup> 東京農工大学工学部, 小金井市  
Tokyo University of Agriculture and Technology, 2-24-16,  
Naka-cho, Koganei-shi, Tokyo 184-8588 Japan  
<sup>a)</sup> E-mail: tsamesim@cc.tuat.ac.jp

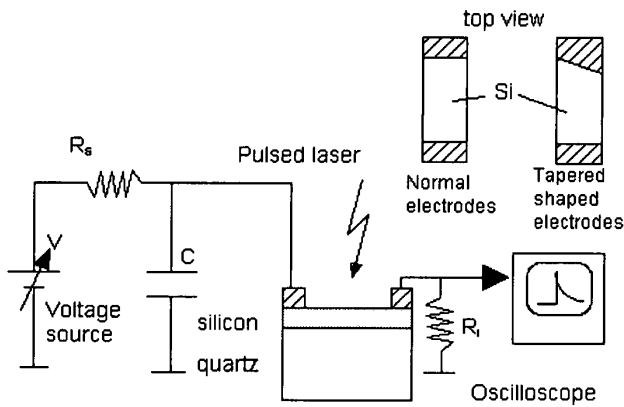


図1 電流加熱結晶化法で用いる実験概略図。挿入図はシリコンストリップの形状を表す

Fig. 1 Schematic system of the electrical current induced Joule heating method. Inset presents the shape of silicon strips.

せた。溶融シリコンは金属のように抵抗が低くなるために、充電されたコンデンサからシリコンに大きな電流が流れる。発生したジュール熱により、シリコンは加熱され溶融が持続する。その後、熱の放散によりシリコンの温度は低下し、固化・結晶化する。ロード抵抗  $R_l$  の両端の電位差からシリコンに流れる電流値を算出した。

透過型電子顕微鏡の明視野像を観察することにより結晶粒の分布を調べた。観察前にサンプルの基板側よりイオンミリング法で基板をエッチングした。またラマン散乱スペクトルより得られた結晶粒の結晶特性について調べた。電流加熱を施した後に触針段差計を用いてシリコンストリップの膜厚変化を調べた。

### 3. 結果と考察

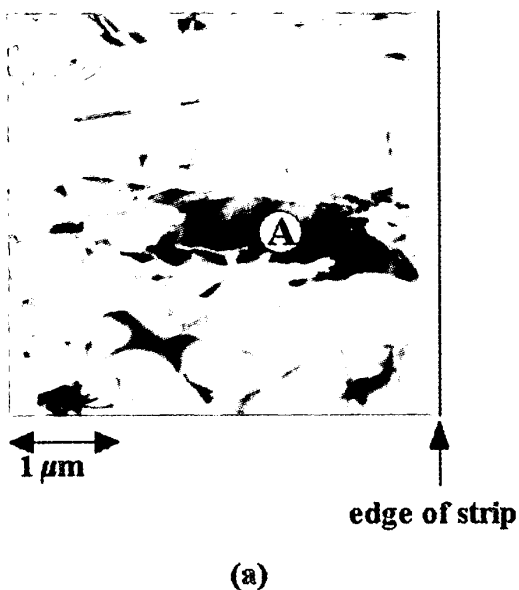
図2(a)に単純形状シリコンストリップを用いて電流加熱結晶化法により結晶化したサンプルの透過型電子顕微鏡の明視野像を示す。初期印加電圧 125 V、キャパシタンス 0.22  $\mu\text{F}$  で結晶化したサンプルの写真である。レーザ結晶化法では 50~100 nm の径の小結晶粒が均一に形成される [7] のに対し、本方法ではシリコンストリップのエッジ部分よりおよそ 4  $\mu\text{m}$  の結晶粒が横方向に成長しており大結晶粒が形成されていることがわかる。これはエッジからの熱の放散によりエッジ部分に、温度こう配が形成され、そのため、エッジから内側に向かって横方向に結晶成長が起こったものと思われる。この写真より完全に結晶化し、結晶粒同士は密接して形成されていることがわかる。同図 (b) には結晶粒の回折パターンを示す。結晶粒の配向は基

板垂直方向に (110) であることがわかった。またストリップ内部領域には小結晶粒領域が一樣に存在していることがわかった。この領域は温度こう配が形成されなかったため、横方向結晶化が起こらず、速い固化が一挙に起こり、微結晶化したものと推察される。またこの微結晶化領域と大結晶粒領域の間には 0.5  $\mu\text{m}$  程度の結晶粒が形成された。エッジ端より内側部分へ結晶成長が進む間、ストリップ内側部分は過冷却状態になっていると思われる。過冷却領域が急速に固化し、微結晶化する。そのとき潜熱を放出するために温度が上昇する。温度上昇のために、大結晶粒領域と微結晶領域の界面付近が再溶融し、結晶化したために 0.5  $\mu\text{m}$  程度の結晶粒が形成されたものと思われる。微結晶化領域の中には図3に示すような大きな結晶粒も見出された。楕円状中心部に結晶核が形成され、結晶成長が外周に向けて生じたものと思われる。

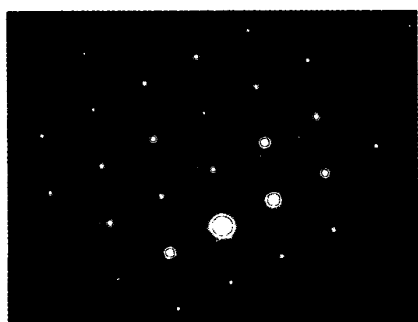
図4にテーパ形状のシリコンストリップを用いたときのレーザ照射後にシリコンに流れた電流値の時間変化のグラフを示す。結晶化条件は初期印加電圧 90 V、キャパシタンス 0.33  $\mu\text{F}$  である。ストリップ長は長い端で 142  $\mu\text{m}$ 、短い端で 98  $\mu\text{m}$  のストリップを用いた。レーザ照射とともに 2 A の大きな電流がシリコンストリップを流れていることがわかる。5 ns パルスレーザを照射することにより、シリコンが溶融し抵抗が下がったために電流が流れたことを示す。電流はレーザ照射後 17  $\mu\text{s}$  間シリコンに流れた。時間が経過するのと同時に電流値は減少する。これはコンデンサからの電荷放出による電位の低下とシリコンの固化による抵抗値の増大による。

図5(a)に初期印加電圧 90 V、キャパシタンス 0.33  $\mu\text{F}$  で電流加熱結晶化をしたときの透過型電子顕微鏡の明視野像を示す。同図 (b) は結晶粒の分布をトレースしたものである。ストリップ長の短い領域 (図の右側) のエッジ端よりおよそ 18  $\mu\text{m}$  の領域に大結晶粒がエッジに沿って存在する。最大約 13  $\mu\text{m}$  長の結晶粒が得られた。13  $\mu\text{m}$  長の結晶粒はテーパ型シリコンストリップを使用したことによりストリップ長の長い領域から短い領域に向ける温度こう配が生じ、固化過程でのシリコンの液相・固相界面の移動により形成されたものと思われる [8]。

図6にテーパ形状のサンプルの電流加熱結晶化後の膜厚分布を触針段差計で測定した結果を示す。初期印加電圧は 90 V、キャパシタンスは 0.47  $\mu\text{F}$  のときの結果である。図はシリコンストリップの幅方向での断面



(a)



(b)

図2 単純形状シリコンストリップを使用し、初期電圧 125 V、キャパシタンス 0.22  $\mu\text{F}$  で結晶化させたときの透過型電子顕微鏡の明視野像 (a). (b) は (a) の A の場所での回折像

Fig. 2 Photograph of the bright field image of silicon films using normal shaped strip crystallized with an applied voltage of 125 V and a capacitance of 0.22  $\mu\text{F}$ : (a), and diffraction pattern at a crystalline grain indicated by (A) in the photograph (a): (b).

図である。断面の左端はストリップ長の短い端である。断面の左端から 10  $\mu\text{m}$  の領域は大結晶粒がストリップ幅方向に横成長した領域である。大結晶粒領域での最大膜厚は 66 nm、最小膜厚は 58 nm であった。したがって溶融時のシリコン原子の移動はほとんどないということがわかった。また、単純形状ストリップサンプルを使用した場合も同様に平坦である [6] ことより、本方法で結晶化したサンプルはテーパの形状にかかわらず表面は非常に平坦であることがわかった。

図7に電流加熱結晶化法により結晶化されたシリコン薄膜のラマン散乱スペクトルを示す。テーパ形状の



図3 単純形状シリコンストリップを使用したときの微結晶領域に形成された大結晶粒の透過型電子顕微鏡の明視野像

Fig. 3 Photograph of the bright field image of large crystalline grain in microcrystallized region with a normal shaped silicon strips.

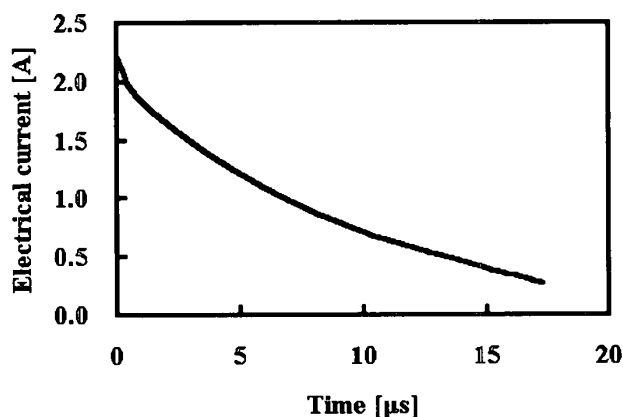


図4 初期電圧 90 V、キャパシタンス 0.33  $\mu\text{F}$  のときのシリコンストリップに流れる電流値の経時変化

Fig. 4 The change of the electrical current flowing in the silicon strip on time at an applied voltage of 90 V and a capacitance of 0.33  $\mu\text{F}$ .

シリコンストリップを用いて結晶化させたシリコン薄膜の (a) 大結晶粒領域、(b) 小結晶粒領域、そして比較として (c) 単結晶シリコンのスペクトルを示した。大結晶粒領域では結晶シリコンによる鋭い TO フォノンピークが  $517.4 \text{ cm}^{-1}$  に観測された。また  $480 \text{ cm}^{-1}$  付近に現れるアモルファスシリコンのブロードな TO フォノンピークは観測されなかった。これは大結晶粒領域の結晶粒はアモルファス成分を含まず、単結晶と同じであるということを示している。TO フォノンピークが単結晶シリコン ( $520.3 \text{ cm}^{-1}$ ) のものと比べ

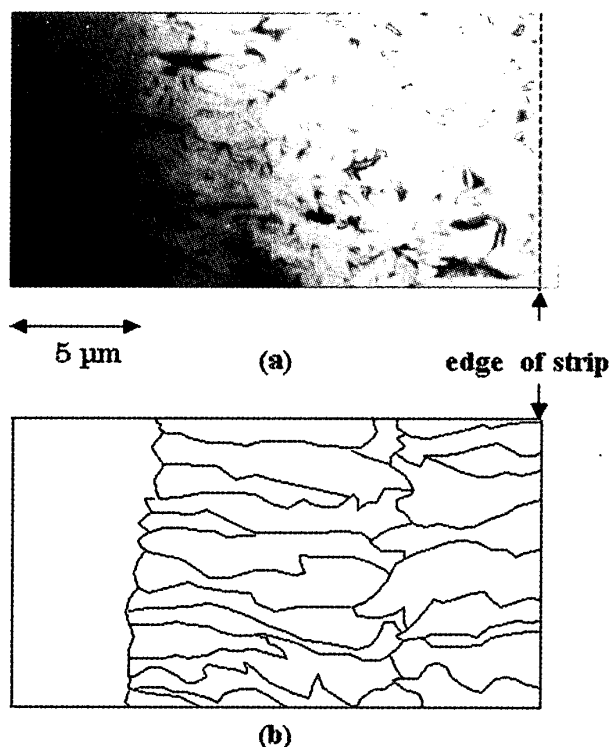


図5 (a) テーパ形状のシリコンストリップを使用したときの透過型電子顕微鏡の明視野像 (90 V, 0.33  $\mu$ F) と (b) トレースした図

Fig. 5 (a) Photograph of the bright field image of silicon films with tapered shaped strip (90 V, 0.33  $\mu$ F) and illustration of distribution of grain boundaries is also given by Fig. (b).

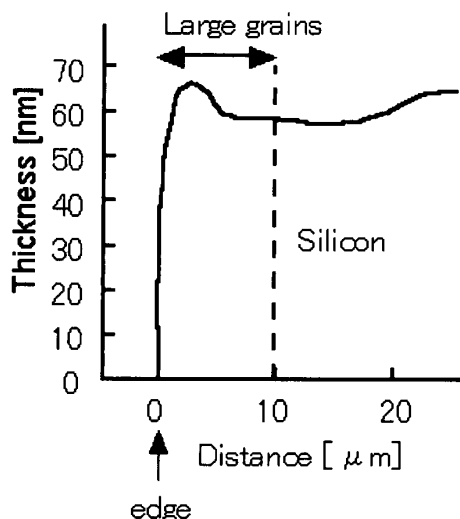


図6 触針段差計で測定された大粒径領域を伴うシリコンストリップのエッジ近辺の膜厚分布. 結晶化条件は 90 V, 0.47  $\mu$ F

Fig. 6 Film thickness distribution around the edge region of silicon strips with a area of large crystalline grains measured by a stylus step equipment for crystallization at 90 V and 0.47  $\mu$ F.

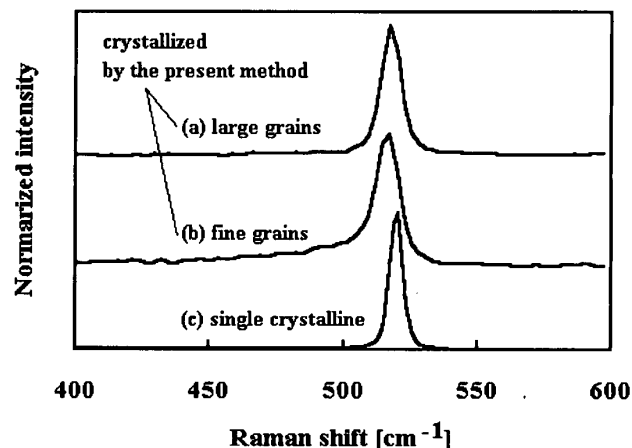


図7 ラマン散乱スペクトル. 電流加熱法で結晶化された大結晶粒領域 (a) と小結晶粒領域のスペクトル (b), 単結晶シリコン (c) のスペクトル

Fig. 7 Raman scattering spectra. (a): the area with large crystalline grains and (b): the area with fine crystalline grains crystallized by Joule heating method, (c): single crystalline silicon.

て  $2.9 \text{ cm}^{-1}$  低波数側にシフトしている. 電流加熱結晶化法により結晶化されたシリコン薄膜にもシリコン薄膜とガラス基板の界面に引っ張り応力が内在することを示している [9]. これは図6の結果同様, 溶融している間, シリコンの移動がほとんどないことを示唆する. シフト量より見積もられた引っ張り応力の大きさは  $5.6 \times 10^8 \text{ Pa}$  であった. TO フォノンピークの半値幅が単結晶シリコンの半値幅より広がっているのはシリコン薄膜とガラス基板の界面に働く引っ張り応力のためであると思われる [10]. 一方, 小結晶粒領域のスペクトルには結晶シリコンの TO フォノンピークとともにアモルファスシリコンのブロードな TO フォノンピークが  $480 \text{ cm}^{-1}$  付近に観測された. これは小結晶粒領域には結晶シリコンとともにアモルファス成分を含んでいることを示している. この領域の結晶 TO フォノンピークも単結晶シリコンのものに比べて低波数側にシフトしており, 引っ張り応力が内在することを示唆している.

#### 4. む す び

電流加熱結晶化法により, 膜厚 60 nm のシリコン薄膜の結晶化を試みた. 単純形状のシリコンストリップを用いた場合は熱の放散により温度こう配の生じたストリップ端に  $4 \mu\text{m}$  長の結晶粒が形成された. 面方位は基板垂直方向に (110) である. 更に大きな温度こう配を形成するためにテーパ形状のシリコンストリップを使用し, 横方向結晶化を試みた. その結果, 初期電

## 論文／電流加熱結晶化法によるシリコン薄膜の結晶化

圧90 V, キャパシタンス0.33  $\mu$ Fで結晶化を行ったところ, 17  $\mu$ sの間シリコンは溶融し, 13  $\mu$ m長の結晶粒が形成された。また100 nm程度の小結晶粒も形成された。ラマン散乱スペクトルの結果より大結晶粒はアモルファス成分を含まないということがわかった。シリコン薄膜と基板との界面には $5.6 \times 10^8$  Paの引っ張り応力が内在している。溶融によるシリコン原子の移動はほとんどなく, 表面は平坦であることが明らかになった。

謝辞 この研究を遂行するにあたり, 御協力頂いた東京農工大学・毛利敏男助手, 齋藤忠教授に感謝申し上げます。

## 文 献

- [1] T. Sameshima, "Self organized grain growth larger than 1  $\mu$ m through pulsed-laser-induced melting of silicon films," Jpn. J. Appl. Phys. Lett., vol.32, pp.1485-1488, 1993.
- [2] J. S. Im and H. J. Kim, "On the super lateral growth phenomenon observed in excimer laser-induced crystallization of thin Si films," Appl. Phys. Lett., vol.64, p.2303, 1994.
- [3] R. Ishihara, W.-C. Yeh, T. Hattori, and M. Matsumura, "Effects of light pulsed duration on excimer-laser crystallization characteristics of silicon thin films," Jpn. J. Appl. Phys., vol.34, p.1759, 1995.
- [4] N. Andoh, K. Ozaki, H. Takahashi, and T. Sameshima, "Characterization of crystalline properties of silicon films formed by current-induced Joule heating," Proc. Workshop on Active Matrix Liquid Crystal Displays, pp.261-264, Tokyo Japan, 2000.
- [5] T. Sameshima, N. Andoh, and H. Takahashi, "Rapid crystallization of silicon films using electrical-current-induced Joule heating," J. Appl. Phys., vol.89, no.10, pp.5362-5367, 2001.
- [6] T. Sameshima, K. Ozaki, and N. Andoh, "Large crystalline grain growth using current-induced Joule heating," Appl. Phys., vol.A71, pp.1-6, 2000.
- [7] T. Sameshima, M.Hara, and S.Usui, "XeCl excimer laser annealing used to fabricate poly-Si TFTs," Jpn. J. Appl. Phys., vol.28, pp.1789-1793, 1989.
- [8] N. Andoh, H. Takahashi, and T. Sameshima, "Formation of polycrystalline silicon films using electrical-current-induced Joule heating," Proc. Material Research Society Spring Meeting, vol.664, no.A6.2, San Francisco, 2001.
- [9] B. A. Weinstein and G. J. Piermarini, "Raman scattering and phonon dispersion in Si and GaP at very high pressure," Phys. Rev., vol.B12, p.1172, 1975.
- [10] S. Higashi, N. Andoh, K. Kamisako, and T. Sameshima, "Stress in pulsed-laser crystallized silicon films," Jpn. J. Appl. Phys., vol.40, p.731, 2001.

(平成13年12月6日受付, 14年3月15日再受付)

## 安藤 伸行



平12東京農工大大学院博士課程了。平成12年4月より農工大でポスドク。

## 大北 圭介



現在, 東京農工大学工学部在学中。

## 鮫島 俊之



現在, 東京農工大学工学部助教授。