

準分子雷射正面與背面退火矽膜的再結晶特性研究

Characterization of Polycrystalline Si films Produced by Front Excimer Laser Annealing and Back Excimer Laser Annealing

郭啟全 葉文昌 鄭正元

Chil-Chyuan Kuo Wen-chang Yeh Jeng-Ywan Jeng

摘要

本研究運用具奈秒解析度之原位即時光學檢測技術，研究準分子雷射正面退火(Front excimer laser annealing, Front ELA)與背面退火(Back excimer laser annealing, Back ELA)之 PECVD 矽膜的熔化時間與結晶現象。結果顯示 900Å 厚之矽膜受到準分子雷射正面/背面退火，具有相同之最長矽膜液相持續時間約 110ns；除了矽膜表面熔化門檻值外，矽膜全部熔化與矽膜剝落之準分子雷射能量密度，Front ELA 均高於 Back ELA，主要原因係矽膜對於準分子雷射具有高反射率以及 SiO_2 具有抗反射作用。

關鍵詞：準分子雷射退火、光學檢測、結晶

ABSTRACT

Melting and crystallization phenomena of plasma enhanced chemical vapor deposition (PECVD) amorphous silicon films under front excimer laser annealing and back excimer laser annealing were investigated using in-situ real-time optical measurements with nanosecond time resolution. The longest melt-phase duration of silicon films for front excimer laser annealing and back excimer laser annealing is the same, approximately 110ns for 900 Å-thick silicon thin films. The complete-melting laser fluence and ablation laser fluence of amorphous silicon films for front excimer laser annealing are higher than those of back excimer laser annealing because amorphous silicon films has higher reflectivity and SiO_2 films has anti-reflective characteristic for XeF excimer laser beam.

Keywords : excimer laser annealing、optical measurements、crystallization

一、前言

隨著平面顯示器面積及 TFT-LCD 畫素密度的增加，為了縮短畫點電極的充電時間，擁有較高遷移率的薄膜電晶體是有所需求的，由於 a-Si:H TFTs 的遷移率並不高，而此缺點可以藉由改用多晶矽薄膜電晶體(Poly-Si TFTs)而獲得解決，因為低溫多晶矽電晶體的電子移動率高於非晶矽電晶體約 500 倍[1,2]。運用準分子雷射來製作低溫多晶矽膜已經數年[3-10]，主要原因在於非晶矽膜經過準分子雷射照射後，將產生熔化與晶粒成長，可製作出高品質之多晶矽膜[11]。

本研究團隊於運用準分子雷射製作大晶粒低溫多晶矽薄膜之相關學理與技術發展，已有諸多成果[12~20]。導電率量測[21]、反射率量測[22]、雜質分布量測[23]，與穿透電子顯微鏡[24~27]，等方法常用以解析離子植入(ion-implanted)之非晶矽膜、LPCVD 矽膜[28,29]、非晶 Ge[30,31]，準分子雷射退火之再結晶特性。然而，PECVD 非晶矽膜之準分子雷射退火矽膜之再結晶特性很少有文獻著墨，尤其是 Back ELA 之再結晶特性至今仍無文獻提出。因此本研究針對 PECVD 之非晶矽膜，運用 He-Ne ($\lambda=632.8\text{nm}$) 為檢測光源以 Front Side Reflection (FSR), Back Side Reflection (BSR) 與 Front Side Transmission (FST) 三種光學檢測技術

[32,33]來進行準分子雷射正面/背面退火矽膜之再結晶特性研究。

二、實驗程序

圖 1 是本研究之試片結構。試片係以厚度為 0.7mm 之日本電氣硝子(NEG, Nippon Electronic Glass) NEG OA10 無鹼玻璃為基板。運用 AKT 1600 Cluster Tool 電漿輔助化學氣相沉積(Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition, PECVD)，進行 3000Å 厚之 SiO₂ 膜沉積，接著再沉積 900Å 厚之 a-Si 膜。採用 SiO₂ 厚度為 3000Å，主要原因係 Kuriyama 等作者[34]研究指出 SiO₂ 厚度至少要 1500 Å 才能使試片之界面溫度低於 600°C，如因才可使用玻璃為基板，進行準分子雷射退火非晶矽膜來製作多晶矽。

由於運用 PECVD 製作之矽膜內含有 8~10% 氢含量，如未去氫，即進行準分子雷射退火，則薄膜瞬間吸收龐大準分子雷射能量，使雷射退火的薄膜區域有氫爆現象發生，使矽薄膜易與基板脫離。因此本研究運用高溫氧化爐，在 550°C 通氫氣持續 2 小時，進行矽膜去氫過程，使矽膜之氫含量從 8~10% 減低至約 1~3%，並於準分子雷射退火非晶矽膜前，運用稀釋之氫氟酸以去除氧化膜。

本研究運用德國 LAMBDA PHYSIK 公司所發展的 COMPEx 102 工業用 XeF 準分子雷射(波長 351nm、脈衝持續時間 25ns、脈衝重複率 1 Hz、準分子雷射能量密度於空間上之均勻度大於 90%)進行準分子雷射退火。每次使用 XeF 準分子雷射退火非晶矽膜前，運用 Power meter(SCIENTECH Vector H410)校正準分子雷射之輸出能量。如圖 2 所示為計算準分子雷射能量之示意圖，運用平凸透鏡(透鏡焦距 f=100mm，UV-fused silica)來改變所需之準分子雷射退火能量密度 E_L。計算式如(1)式所示：

$$E_L = \left(\frac{f}{d - f} \right) E_0 \quad \text{---(1)}$$

其中 d 為平凸透鏡至試片距離，E₀ 為剛輸出尚未經過遮罩(slit)之 XeF 準分子雷射能量密度。

當準分子雷射經由閘門開啟輸出後至分光鏡，10% 準分子雷射穿透分光鏡(bean splitter)提供

觸發之光偵測器觸發使用，90% 準分子雷射經過平凸透鏡聚焦於非晶矽薄膜表面。於準分子雷射矽膜退火時間，運用 He-Ne 雷射(10mW)為檢測光源，搭配反射、穿透之光偵測器以及數位示波器(Lecroy sample rate=2GS/s)進行非晶矽膜再結晶特性研究。為了防止準分子雷射光進入光偵測器(photodiode)，而影響所偵測到訊號之正確性，光偵測器前面加裝濾鏡(bandpass filter)，僅使 He-Ne 雷射光能進入光偵測器。

準分子雷射退火後之試片藉由 secco etching 約 4 秒，進行蝕刻晶粒邊界後，再運用場發射電子顯微鏡(FE-SEM)來觀察矽膜表面之微觀結構。圖 3 為兩種準分子雷射退火矽膜之示意圖。圖 4 為準分子雷射退火 PECVD 矽膜檢測示意圖。



圖 1 本研究之試片結構

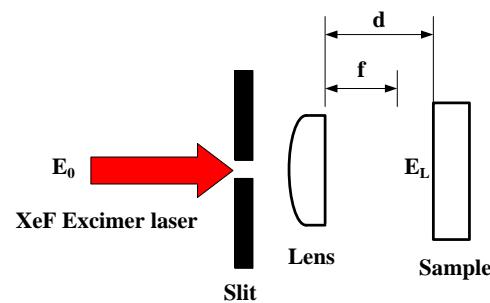


圖 2 計算準分子雷射能量之示意圖

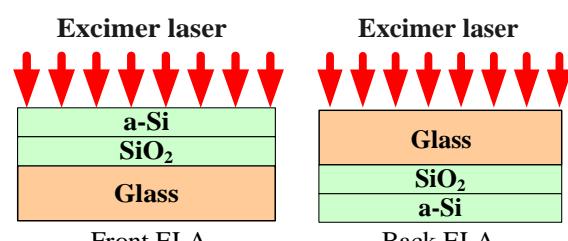


圖 3 兩種準分子雷射退火矽膜之示意圖

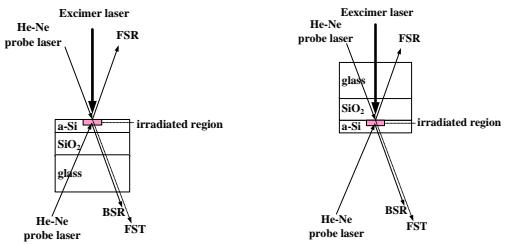


圖 4 準分子雷射退火 PECVD 矽膜檢測示意圖，左圖：準分子雷射正面退火矽膜檢測示意圖；右圖：準分子雷射背面退火矽膜檢測示意圖

三、結果與討論

於 XeF 準分子雷射退火矽膜期間，藉由具奈秒解析度之原位即時光學檢測系統之檢測結果，如圖 5 所示為準分子雷射正面/背面退火矽膜之最長矽膜液相持續時間與準分子雷射能量關係圖，由圖中可以發現，準分子雷射正面/背面退火矽膜之最長矽膜液相持續時間約 110ns 左右，主要原因為矽膜厚度均 900Å。至於影響矽膜液相持續時間之長短，有兩個影響因素：(a)材料厚度；(b)試片是否有預熱。Vega 等作者[35]研究指出，材料厚度越厚，其液相持續時間越長；Im 等作者[36]研究指出，試片預熱可以減緩淬火率(quenching rate)，因此可以延長矽膜之液相持續時間。如圖 6 所示為 Front ELA 與 Back ELA 之矽膜表面熔化之門檻值、矽膜全部熔化之準分子雷射能量密度以及矽膜剝落之準分子雷射能量密度之關係圖。由圖中可以發現，PECVD 矽膜受到 Front ELA 與 Back ELA 具有相同之矽膜表面熔化之門檻值(100mJ/cm^2)，然而 PECVD 矽膜受到 Front ELA 之矽膜完全熔化之準分子雷射能量 ($260\text{mJ/cm}^2 < E < 320\text{mJ/cm}^2$) 以及造成矽膜剝落之準分子雷射能量密度 ($E > 320\text{mJ/cm}^2$) 與 Back ELA 結果相較，均高約 80~100 mJ/cm^2 ，造成此準分子雷射能量密度差異，主要原因係由於 Si 膜於 Front ELA 對於 XeF 準分子雷射具有高反射率以及於 Back ELA， SiO_2 薄膜對於 XeF 準分子雷射具有抗反射作用所影響，此推論與文獻 Battaglin 等作者[37]、Kim 等作者[38]具有相同之觀點。

當非晶矽薄膜接近完全熔化時，可由一些殘存而不連續且微小的固態晶種發生超側向成長，並達到薄膜厚度 2~2.5 倍 [39]。如圖 7 所示為本研究於準分子雷射正面退火矽膜之 super lateral growth

(SLG) 區域，所發現尺寸約 $2\mu\text{m}$ 之大晶粒，此尺寸約為矽膜厚度(900\AA)之 22 倍，大約為運用藍光飛秒雷射(femtosecond laser)退火 100nm 厚非晶膜矽所製作最大晶粒尺寸 280nm 的 7 倍大[40]，此結果代表運用準分子雷射比運用藍光飛秒雷射退火矽膜，較容易製作出大粒徑之多晶矽。

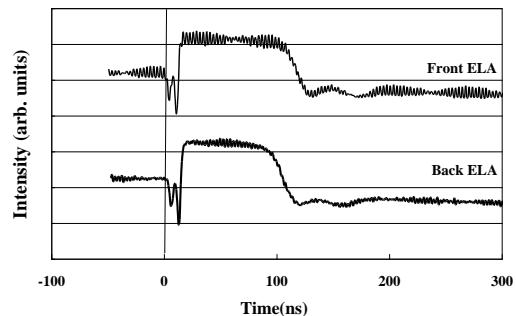


圖 5 準分子雷射正面/背面退火矽膜之最長矽膜液相持續時間關係圖

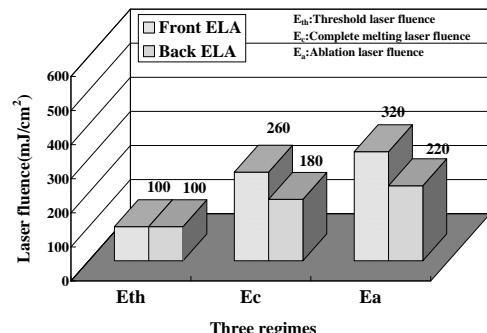


圖 6 準分子雷射正面退火矽膜與背面退火矽膜之表面熔化之門檻值(Eth)、矽膜全部熔化之準分子雷射能量密度(Ec)與矽膜剝落之準分子雷射能量密度(Ea)之關係圖

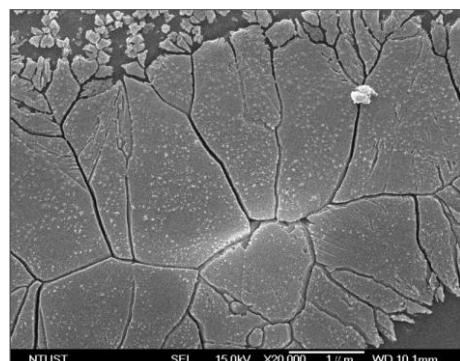


圖 7 於 SLG 區域之多晶矽晶粒

四、結論

本研究旨在運用具奈秒解析度之原位即時光學檢測技術於準分子雷射正面退火與背面退火900Å 厚之 PECVD 矽膜，研究結論可以歸納如下所示：

(1)900Å 厚之 PECVD 矽膜受到準分子雷射正面/背面退火，具有相同之最長矽膜液相持續時間約110ns。

(2)除了矽膜表面熔化門檻值外，矽膜部分熔化、矽膜全部熔化、矽膜剝落其準分子雷射正面退火矽膜之能量值均高於準分子雷射背面退火矽膜之能量，主要原因係準分子雷射非直接照射非晶矽膜而是經過 SiO₂ 膜後再照射至非晶矽膜，由於 SiO₂ 膜具有抗反射作用，所以產生相同相變化之條件下，其準分子雷射能量密度值均低於正面退火矽膜之能量密度值。

本研究之成果，有助於準分子雷射退火製作出大晶粒之多晶矽，尤其當試片具有半透光膜 (semitransparent films)結構 [41]，因為本研究可以確實掌握矽膜之再結晶時間與再結晶特性。此外本研究未來也可以於試片上製作出不同厚度之矽膜，當試片經過準分子雷射照射後將產生不同之溫度梯度，進而能操控準分子雷射退火矽膜之多晶矽最佳形狀與尺寸，進而提昇 poly-TFTs 元件性能，對於未來製作出單晶 TFTs 是非常具有潛力。

五、誌謝

本研究承蒙行政院國家科學委員會計畫 NSC 93-2218-E-011-002、NSC 93-2218-E-011-003 之經費補助，特此感謝。

參考文獻

- [1] Display Search, Quarterly TFT LCD Supply/Demand and Capital Spending Report (2004).
- [2] J.H. Werner, R. Dassow, T.J. Rinke, J.R Kfhler, R.B. Bergmann, Thin Solid Films 383, 95(2001).
- [3] Sera,F.Okumura,H.Uchida,S.Itoh,S.Kaneko and K.

Hotta, IEEE Trans. Electron Devices 36,2686(1989).

[4] R. Z. Bachrach, K. Winer, J. B. Boyce, S. E. Ready, R. I. Johnson, and G. B. Anderson, J. Electron. Mater. 19, 241 (1990).

[5] T. Sameshima and S. Usui, Appl. Phys. Lett. 59, 2724 (1991).

[6] G. K. Giust and T. W. Sigmon, Appl. Phys. Lett. 70, 767 (1997).

[7] S. D. Brotherton, D. J. McCulloch, J. P. Gowers, J. R. Ayres, and M. J. Trainor, J. Appl. Phys. 82, 4086 (1997).

[8] J. S. Im, M.A. Crowder, R. S. Sposili, J. P. Leonard, H. J. Kim, J. H. Yoon, V. V. Gupta, H. J. Song, and H. S. Cho, Phys. Status Solidi A 166, 603 (1998).

[9] A. T. Voutsas, Appl. Surf. Sci. 208, 250 (2003).

[10] K. Sera, F. Okumura, H. Uchida, S. Itoh, S. Kaneko and K. Hotta, IEEE Trans. Electron Devices 36,2686(1989).

[11] Ryoichi Ishihara,"Study of Crystal-Silicon Thin-Film Transistors on Amorphous Substrate," Department of Physical Electronics Dissertation, Tokyo Institute of Technology (1996).

[12] 郭啟全、葉文昌、陳佳斌、鄭正元，"線上即時檢測技術於準分子雷射退火非晶矽膜"，明志學報，第三十八卷 第二期，中華民國九十五年六月，pp.35~pp.42。

[13] 郭啟全、葉文昌、鄭正元、陳佳斌，"XeF 準分子雷射退火之低溫多晶矽薄膜再結晶特性研究與分析"，明志學報 第三十七卷 第二期，中華民國九十五年一月，pp.17~pp.23。

[14] Chil-Chyuan Kuo, Wen-chang Yeh, Chia-Bin Chen, Jeng-Ywan Jeng, " Evidence of explosive crystallization during excimer laser

- crystallization by time-resolved optical diagnostic measurement using He-Ne probe laser ",Digest of the technical paper, pp.191~194, The twelfth international workshop on Active-Matrix Liquid-Crystal Display (AM-LCD), Kanazawa, Japan, July 6 to 8, (2005)。
- [15]郭啟全、葉文昌、陳佳斌、鄭正元，"矽膜相變化線上光學檢測技術"，2005 精密機械與製造技術研討會，永達技術學院，中華民國九十四年五月二十~二十二日(2005)。
- [16]郭啟全、鄭正元，"非晶矽膜再結晶特性之線上光學檢測技術與表面形貌研究與分析"，電子月刊，中華民國九十四年六月，pp.216~pp.22。
- [17]郭啟全、陳佳斌、鄭正元、林岳進，"準分子雷射退火線上矽膜品質檢測技術與結晶模擬器製作"，第四屆台塑集團應用工程技術研討會，中華民國九十四年五月二十七日(2005)。
- [18]郭啟全、葉文昌、陳佳斌、鄭正元，"不同吸收係數之矽膜結晶機制即時線上光學診斷技術"，第四屆台塑集團應用工程技術研討會，中華民國九十四年五月二十七日(2005)。
- [19]郭啟全、鄭正元、葉文昌、陳佳斌，" XeF 準分子雷射退火自動操控系統研究"，2005 年中華民國自動控制研討會，南台科技大學，中華民國九十四年十一月十八~十九日(2005)。
- [20]Chil-Chyuan Kuo, Wen-Chang Yeh, Chia-Bin Chen, Jeng-Ywan Jeng," Nanosecond Time Resolution In-situ Optical Reflection and Transmission Measurements during XeF Excimer Laser Interaction with Amorphous Silicon Thin Films "，Material Science Forum Vols. 505,337 (2006).
- [21]M. O. Thompson, G. J. Galvin, J. W. Mayer, P. S. Peercy, J. M. Poate, D. C. Jacobsen, A. G. Cullis, and N. G. Chew, Phys. Rev. Lett. 52, 2360(1984).
- [22]K. Murakami, O. Eryu, K. Takita, and K. Masuda, Phys. Rev. Lett. 59, 203(1987).
- [23]W. Sinke and F. W. Saris, Phys. Rev. Lett. 53, 2121 (1984).
- [24] J. Narayan, C. W. White, O. W. Holland, and M. J. Aziz, J. Appl. Phys. 56, 1821 (1984).
- [25] J. Narayan, S. J. Pennycook, D. Fathy, and O. W. Holland, J. Vac. Sci. Technol. A 2, 1495 (1984).
- [26] J. Narayan, C. W. White, M. J. Aziz, B. Stritzker, and A. Walthuis, J. Appl. Phys. 57, 564 (1985).
- [27] J. Narayan, J. Vac. Sci. Technol. A 4, 61(1986).
- [28] Y. F. Chong,H.-J. L. Gossman,M. O. Thompson,S. Yang , K. L. Pey,A. T. S.We,"Time-resolved reflectance studies of silicon during laser thermal processing of amorphous silicon gates on ultrathin gate oxides",Journal of applied physics 95,6048(2004).
- [29]E. Fogarassy,S. de Unamuno,B. Prevot,T. Harrer,S. Maresch," Experimental and numerical analysis of surface melt dynamics in 200 ns-excimer laser crystallization of a-Si films on glass",Thin Solid Films 383 ,48(2001).
- [30]M. Mulato, D. Toet, G. Aichmayr, P. V. Santos and I. Chambouleyron," Laser crystallization and structuring of amorphous germanium," Appl. Phys. Lett. 70 , 3570 (1997).
- [31] J. Siegel,J. Solis,C. N. Afonso,"Recalcescence after solidification in Ge films melted by picosecond laser pulses",Applied physics letters 75, 1071(1999).
- [32] J. Boneberg, J. Nedelcu, H. Bender, and P. Leiderer, Mater. Sci. Eng., A 173, 347 (1993).
- [33] K. Murakami, O. Eryu, K. Takita, and K. Masuda, Phys. Rev. Lett. 59, 2203(1987).

- [34]Hiroyuki Kuriyama, Seiichi Kiyama, Shigeru Noughchi, Takashi Kuwahara, Satoshi Ishida,Tomoyuki Nohda,Keiichi Sano,Hiroshi Iwata, Hiroshi Kawata, Masato Osumi, Shinya Tsuda, Shoichi Nakano and Yukinori Kuwano, "Enlargement of Poly-Si Film Grain Size by Excimer Laser Annealing and Its Application to High-Performance Poly-Si Thin Film Transistor," Japanese Journal of Applied Physics 30,3700(1991).
- [35] F. Vega,N. Chaoui, J. Solis,J. Armengol andC. N. Afonso, Optical evidence for a self-propagating molten buried layer in germanium films upon nanosecond laser irradiation," Journal of Applied Physics 97, 103519(2005).
- [36]Im, J. S., Kim, H. J., and Thompson, M. O., "Phase Transformation Mechanisms Involved in Excimer Laser Crystallization of Amorphous Silicon Films," Applied Physics Letters 63, 1969(1993).
- [37] Battaglin, C.,Caccavale, F., Menelle, A., Montecchi, M., Nichelatti, E., Nicoletti, F., Polato, P.," Characterization of antireflective TiO₂/SiO₂ coatings by complementary techniques," Thin Solid Films Volume 351,176(1999).
- [38] H. J. Kim and J. S. Im, Appl. Phys. Lett., 68 (11), 1513(1996).
- [39] Voogt, F. C., and Ishihara, R., "A Combined TEM and Time-Resolved Optical Reflectivity Investigation into the Excimer-Laser Crystallization of A-Si films," Thin Solid Films 383, 45(2001).
- [40]Yi-Chao Wang, Kuan-Wen Chen, Ci-Ling Pan, Jia-Min Shieh, Zun-Hao Chen, and Bau-Tong Dai," Blue Femtosecond Laser-Induced Crystallization of Amorphous Silicon for TFT Applications," p.35,Optics and Photonics Taiwan (2005).
- [41]W. C. Yeh and M. Matsumura, "Proposed sample structure for marked enlargement of excimer-laser-induced lateral grain growth in Si thin films," Japanese Journal of Applied Physics 41,1909 (2002).