

不同矽膜預熱溫度之熔化時間研究與分析

Temperature Dependence of Melt Duration of Silicon Thin Films during XeF Excimer Laser Crystallization

郭啟全 葉文昌 李箕峰 鄭正元

Chil-Chyuan Kuo Wen-chang Yeh Ji-Feng Lee Jeng-Ywan Jeng

摘要

由於擁有大晶粒尺寸之多晶矽膜才可以製作出性能優良之低溫多晶矽薄膜電晶體。依據理論公式分析，多晶矽膜之晶粒尺寸大小與矽膜受到準分子雷射照射熔化後之成核時間息息相關。因此本研究以試片預熱的方式來提升矽膜熔化時間，並運用線上光學檢測系統來檢測矽膜之熔化時間。結果顯示，試片隨著預熱溫度的提高，其矽膜熔化時間將隨之提高，此實驗結果符合理論公式之預測。當矽膜厚度為 50nm 在 500°C 預熱溫度，其矽膜最長熔化時間為 480ns，約試片置於室溫之最長熔化時間之 2.22 倍；當矽膜厚度為 90nm 在 500°C 預熱溫度，其矽膜最長熔化時間更高達到 711ns，約試片置於室溫之最長熔化時間之 2.06 倍，並於超級橫向長晶區域發現長達 3 μ m 之晶粒。

關鍵詞：矽膜液相持續時間、試片預熱、光學檢測

ABSTRACT

Preheating the substrate for silicon thin films in excimer laser crystallization will be shown theoretically and experimentally to be effective in enhancing of grain size of polycrystalline silicon. The melt-phase duration of the silicon thin films preheated by various temperatures ranging from 100°C to 500°C were experimentally investigated during XeF excimer laser crystallization by time-resolved optical reflectivity measurements. The longest melt-phase duration for amorphous silicon thin film of 50 nm and 90 nm thick are 480ns and 711ns, respectively. The diameter of disk grain in the super lateral growth (SLG) regime as large as 3 μ m was successfully fabricated by a single shot XeF excimer laser irradiation for 90nm thick silicon thin films at a substrate temperature of 500°C.

Keywords : melt-phase duration, substrate heating, optical measurements

一、前言

優良的低溫多晶矽薄膜電晶體 (low temperature polycrystalline silicon, LTPS TFT)，在高解析度液晶顯示器 (High Definition Liquid Crystal Display, HD LCD) 及有機發光顯示器 (Organic light-emitting diode, OLED) 領域上具有相當的應用。在玻璃基板上製作高品質的低溫多晶矽薄膜，由於受到玻璃基板之熔點限制，通常均使用低溫製程之準分子雷射退火技術[1]來製作低溫多晶矽薄膜。

由於準分子雷射退火後多晶矽之晶粒尺寸大小與晶粒邊界將影響低溫多晶矽薄膜電晶體之電性特性[2]。因此當多晶矽之晶粒尺寸愈大，晶粒邊界就相對地減少，所以載子於低溫多晶矽薄膜電晶體內之移動率就變快速，因此低溫多晶矽薄膜電晶體之性能就優越。然而，一般運用準分子雷射製作低溫多晶矽膜，其試片均置於室溫，所以當矽膜受到準分子雷射照射後產生熔化至凝固時間非常短(奈秒等級)。因此當試片置於室溫並僅使用準分子雷射一次照射，要製作具有大尺寸之低溫多晶矽膜困難度相當高，主要原因在於矽

郭啟全 國立臺灣科技大學機械系 研究生

明志科技大學機械系 講師

葉文昌 國立臺灣科技大學電子系 助理教授

李箕峰 國立臺灣科技大學機械系 研究生

鄭正元 國立臺灣科技大學機械系 教授

膜之凝固速率非常快[3](高達 10^{10} K/s)。因此於室溫條件下一般所能夠製作出之多晶矽膜尺寸一般均小於 1000\AA [4]。

由於多晶矽膜之晶粒尺寸大小與矽膜受到準分子雷射照射熔化後之成核時間(nucleation time)息息相關。因此如何於準分子雷射退火矽膜期間，降低矽膜之凝固速率，並延長矽膜之成核時間來改善多晶矽薄膜的成膜品質，即變成一個製作性能優良低溫多晶矽薄膜電晶體之重要議題。

根據準分子雷射退火矽膜之暫態(transient)溫度熱傳機制公式[5]，如式(1)所示，由式子中可以觀察出增加結晶粒徑方法為：(a)增加基板溫度 T_{sub} ；(b)增加 Q ；(c)減少 K_{sub} 或 C_{sub} 都有助於增長矽膜凝固時間 t_{nuc} 。

$$t_{nuc} = \frac{Q^2}{(T_{nuc} - T_{sub})^2 C_{sub} \pi K_{sub}} \text{-----(1)}$$

其中， t_{nuc} 為矽膜到達結晶核產生溫度 T_{nuc} 之時間； T_{nuc} 為矽膜產生結晶核之溫度 T_{sub} ：基板溫度； Q 為經過 25ns XeF 準分子雷射照射後囤積在矽膜中的全部能量； C_{sub} 為基板比熱(specific heat)； K_{sub} 基板熱傳導係數。

由於準分子雷射退火矽膜時，其凝固速率會受到雷射脈衝持續的時間、雷射的能量密度以及基板的溫度有所不同，其中以基板的溫度影響最大。因此本研究針對增加基板溫度 T_{sub} ，來提升矽膜到達結晶核產生溫度 T_{nuc} 之成核時間，因為考慮到玻璃基板之熔點約 700°C 左右以及當試片預熱溫度超過 600°C 以上，試片上之非晶矽膜將產生再結晶現象，因此本研究以試片預熱溫度 500°C 為上限，並以脈衝式 XeF 準分子雷射來退火矽膜，於矽膜期間運用線上光學檢測系統[6-11]來檢測矽膜之熔時間。此外，準分子雷射退火後之試片再運用場發射電子顯微鏡來觀察矽膜之晶粒尺寸。

二、實驗程序

本研究運用厚度 0.7mm 之日本電氣硝子(Nippon Electronic Glass, NEG) OA10 無鹼玻璃為

基板，並運用 AKT 1600 Cluster Tool 電漿輔助化學氣相沉積(Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition, PECVD)機台進行 300nm 厚之 SiO_2 膜沉積，接著再沉積 50nm 或 90nm 厚之 a-Si 膜。

本研究將試片置於陶瓷加熱板上，藉由調整自耦變壓器之輸出電壓來預熱試片，並藉由熱電耦來校正試片上之溫度與自耦變壓器輸出電壓之關係，如圖 1 所示為自耦變壓器之輸出電壓與試片溫度關係圖，由圖可以觀察出，隨著自耦變壓器之輸出電壓的提高，試片之溫度也隨之提高，因此本研究之試片所需之不同預熱溫度 100°C 、 200°C 、 300°C 、 400°C 、 500°C 皆可運用自耦變壓器之輸出電壓而得到所需之試片預熱溫度；如圖 2 所示為準分子雷射退火矽膜前之試片預熱情形。

如圖 3 所示為矽膜熔化時間之光學檢測示意圖。矽膜退火熱源為德國 LAMBDA PHYSIK 公司所生產與製造之 COMpex 102 工業用 XeF 準分子雷射(波長 351nm 、脈衝持續時間 25ns)，於準分子雷射退火矽膜之光路中運用 $4\text{mm}\times 15\text{mm}$ 之遮罩來增加準分子雷射光束之能量均勻度，而避免使用之昂貴之光束均勻器，並於每次使用 XeF 準分子雷射退火非晶矽膜之前，運用 Power meter 來校正 XeF 之準分子雷射之輸出能量。

準分子雷射退火後之矽膜，可藉由 Secco etching 進行非晶矽膜去除以及多晶矽之晶粒邊界蝕刻後，再藉由 JEOL JSM-6500F 之高解析度場發射電子顯微鏡，以入射電子加速電壓 15KV 來觀察多晶矽之晶粒尺寸與矽膜表面之微觀結構。

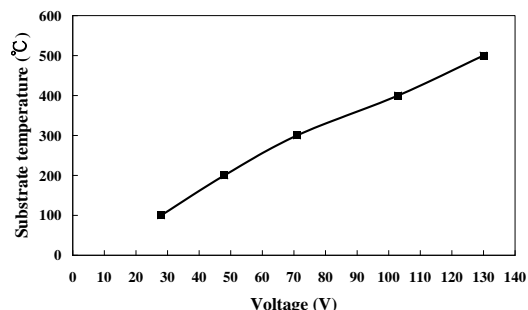


圖 1 自耦變壓器輸出電壓與溫度關係圖

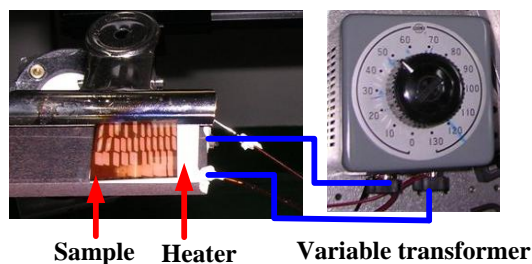


圖 2 準分子雷射退火前之試片預熱情形

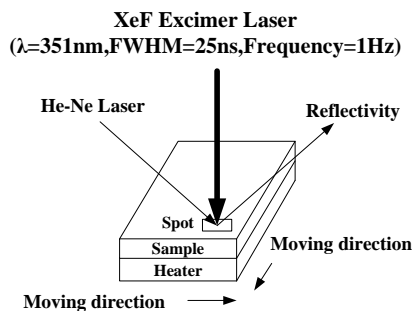


圖 3 矽膜熔化時間之光學檢測示意圖

三、結果與討論

如圖 4、5 所示，分別為矽膜厚度 50nm、90nm 於不同預熱溫度條件下之準分子雷射能量密度與矽膜熔化時間之關係。當試片預熱溫度為 100°C、200°C、300°C 時，經過準分子雷射照射後，其矽膜熔化時間與試片為置於室溫之熔化時間比較，對於矽膜厚度 50nm，其最長熔化時間僅有微量增長現象，每增加 100°C 約增長 9ns~21ns，對於矽膜厚度 90nm，也具有類似情形，其矽膜最長熔化時間均約為 340~350ns 間。當試片預熱溫度為 400°C 時，對於矽膜厚度 50nm，與試片預熱溫度 300°C 比較，其矽膜最長熔化時間僅增長 9ns；然而對於矽膜厚度 90nm，與試片預熱溫度 300°C 比較，其矽膜最長熔化時間卻增長了 244ns。當試片預熱溫度為 500°C 時，對於矽膜厚度 50nm，與試片預熱溫度 400°C 比較，其矽膜最長熔化時間增長 210ns；然而對於矽膜厚度 90nm，與試片預熱溫度為 400°C 比較，其矽膜最長熔化時間僅增長 120ns。產生矽膜熔化時間增長，主要原因在於試片預熱可以減緩淬火率(quenching rate) [12]，因此可以延長矽膜之液相持續時間。

由圖 4 中可以觀察到其矽膜最長熔化時間為 480ns，約試片置於室溫之最長熔化時間~216ns 之

2.22 倍。由圖 5 中可以觀察到其矽膜最長熔化時間更高達到 711ns，約試片置於室溫之最長熔化時間~345ns 之 2.06 倍。以上結果與式(1)之理論公式預測非常符合，但是於蒐集的文獻中，Kuriyama 等人[13]研究卻發現當其試片預熱溫度為 400°C 時，矽膜受到準分子雷射照射後其凝固速度僅為試片置於室溫之 1/3，相對地其矽膜液相持續時間也增加 3 倍，當試片預熱 500°C 進行準分子雷射退火其所製作之多晶矽晶粒並未比試片預熱 400°C 大，此結果與本研究之結果有所差異性，可能的原因歸因於兩個研究所使用不同波長之準分子雷射、不同脈衝持續時間以及不同非晶矽膜厚度所致，因為 Kuriyama 等人之研究所使用之準分子雷射為波長 193nm 之 ArF，一個脈衝持續時間僅 19ns 以及非晶矽膜厚度為 1000Å；其中不同波長之準分子雷射以及不同脈衝持續時間對於矽膜之穿透深度(penetration depth)就會產生不一樣之結果，因此兩個研究其凝固速度對於試片不同預熱溫度就有不一樣之敏感性(sensitivity)。

如圖 6 所示為矽膜厚度 50nm 與 90nm 於不同預熱溫度條件下之矽膜最長熔化時間關係，由此圖可以觀察到矽膜厚度 90nm 之試片，當其預熱溫度為 400°C 與 500°C 時，其矽膜最長熔化時間有顯著地增長，但是對於矽膜厚度為 50nm 之試片，預熱溫度需達 500°C 時，其矽膜最長熔化時間才有顯著地增長，因此可以推論，當矽膜厚度越厚，對於增長矽膜最長熔化時間而言，較具溫度敏感性。

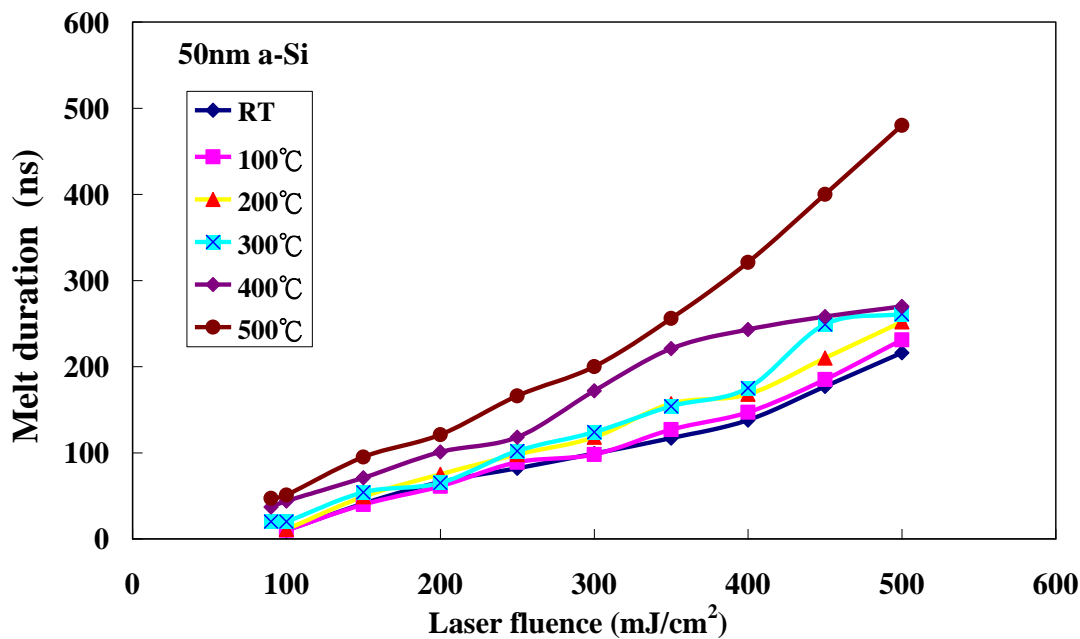


圖 4 矽膜厚度 50nm 於不同試片預熱溫度條件下準分子雷射能量密度與矽膜熔化時間之關係

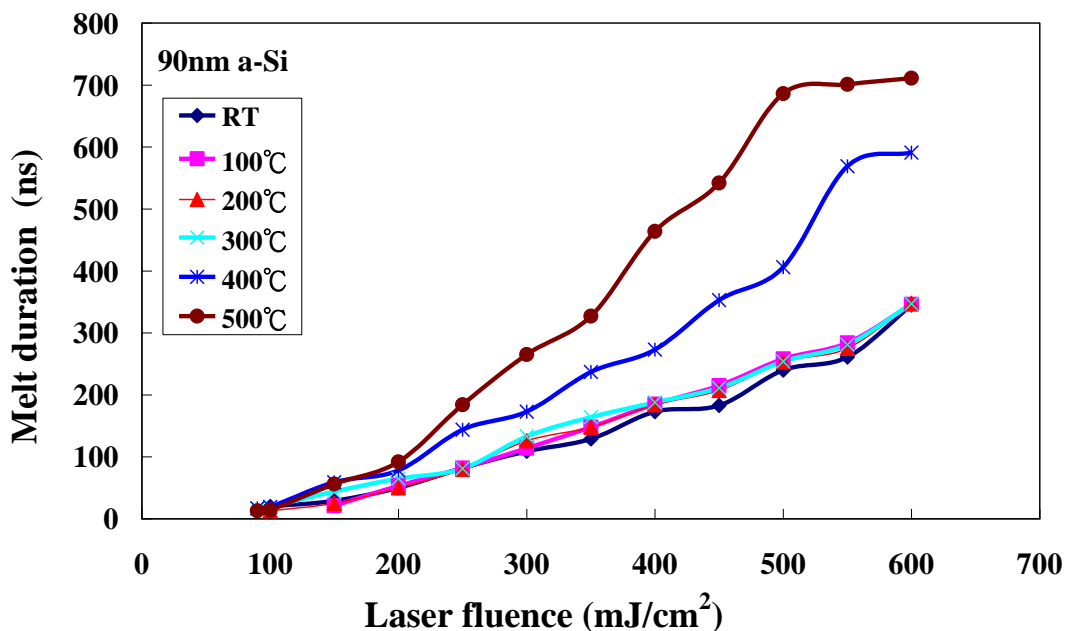


圖 5 矽膜厚度 90nm 於不同試片預熱溫度條件下準分子雷射能量密度與矽膜熔化時間之關係

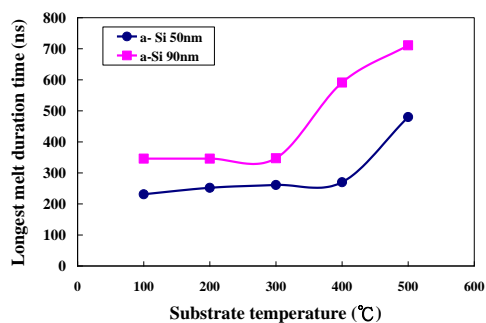


圖 6 矽膜厚度 50nm 與 90nm 於不同預熱溫度下之矽膜最長熔化時間關係

如圖 7 所示為試片預熱溫度與矽膜表面產生熔化之準分子雷射能量密度門檻值(threshold)關係。由圖可以發現，當試片預熱溫度越高，產生矽膜表面熔化之準分子雷射能量門檻值將逐漸降低。對於矽膜厚度 50nm，試片置於室溫下，其矽膜表面熔化之準分子雷射能量密度門檻值為 $100\text{mJ}/\text{cm}^2$ ，然而試片一但經過預熱 ($200^\circ\text{C}\sim 500^\circ\text{C}$)，其矽膜表面熔化之準分子雷射能量密度門檻值將降低至 $90\text{mJ}/\text{cm}^2$ ；對於矽膜厚度 90nm，試片置於室溫下，其矽膜表面熔化之準分子雷射能量密度門檻值將為 $125\text{mJ}/\text{cm}^2$ ，然而試片一但經過預熱 (200°C 、 300°C)，其矽膜表面熔化之準分子雷射能量密度門檻值將降低至 $100\text{mJ}/\text{cm}^2$ ，當試片預熱溫度為 400°C 、 500°C ，其矽膜表面熔化之準分子雷射能量密度門檻值又將降為 $90\text{mJ}/\text{cm}^2$ 。因為造成矽膜表面產生熔化之溫度僅約 1000°C 左右，因此當試片經過預熱後，在不同準分子雷射能量密度照射下，矽膜表面產生熔化之準分子雷射能量密度將隨著試片預熱溫度越高而降低。

如圖 8 所示為矽膜厚度 90nm 之試片預熱溫度 500°C 條件下所製作之多晶矽 SEM 照片，由圖中可以發現，最大之多晶矽晶粒尺寸約達 $3\mu\text{m}$ ，此尺寸約試片置於室溫條件下，所能夠製作出最大之多晶矽晶粒尺寸的 3 倍。如與文獻比較，本研究所製作出之多晶矽晶粒尺寸，大於 Mariucci 等人 [14] 運用 ArF 準分子雷射 (波長 193nm ，脈衝持續時間 19ns) 於 100nm 之矽膜並預熱 450°C ，其所製作之最大多晶矽之晶粒尺寸 $\sim 1\mu\text{m}$ ；接近於 kuriyama 等人 [13] 運用 ArF 準分子雷射 (波長 193nm ，脈衝持續時間

17ns) 於 100nm 之矽膜並預熱 400°C ，所製作之最大多晶矽之晶粒尺寸 $\sim 3\mu\text{m}$ ；小於 Im 等人 [12] 運用 XeCl 準分子雷射 (波長 308nm ，脈衝持續時間 30ns) 於 100nm 之矽膜並預熱 550°C ，所製作之最大多晶矽之晶粒尺寸 $2\sim 6.5\mu\text{m}$ 。

如圖 9 所示為矽膜厚度 50nm 與 90nm 之試片置於室溫與預熱溫度 $100^\circ\text{C}\sim 500^\circ\text{C}$ 條件下所製作出之多晶矽晶粒尺寸關係。由以上之結果陳述，可以明顯發現，試片隨著預熱溫度的提高，其矽膜熔化時間將隨之提高，多晶矽之晶粒尺寸也隨之提高，並於矽膜厚度為 90nm 在 500°C 預熱條件下，製作出長達 $3\mu\text{m}$ 之晶粒。

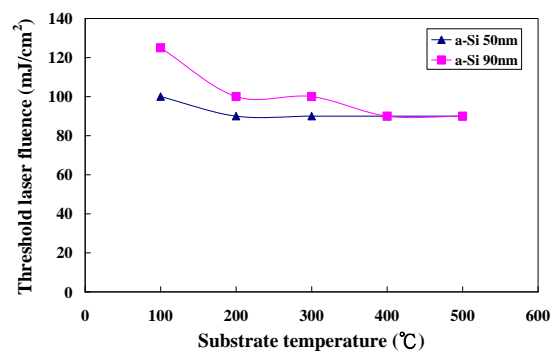


圖 7 試片預熱溫度與矽膜表面產生熔化之準分子雷射能量密度門檻值之關係

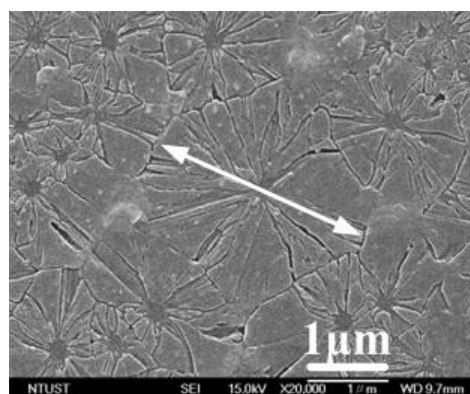


圖 8 試片預熱溫度 500°C 條件下所製作之多晶矽 SEM 照片 (晶粒尺寸 $\sim 3\mu\text{m}$ ，放大倍率 20000 倍)

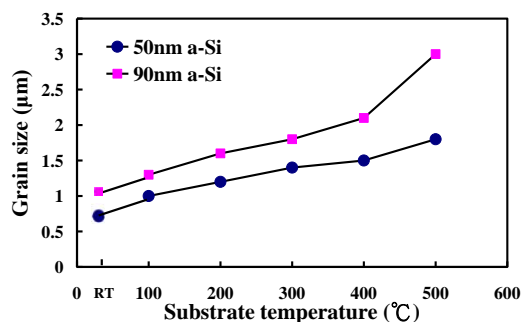


圖 9 矽膜厚度 50nm 與 90nm 之試片置於室溫與預熱溫度 100°C~500°C 條件下所製作之多晶矽關係

四、結論

本研究以試片預熱的方式來提升矽膜之熔化時間，並運用線上光學檢測技術來檢測矽膜之熔化時間。研究結果發現，隨著試片預熱溫度的提高，其矽膜熔化時間將隨之提高，此實驗結果符合理論公式之預測。當矽膜厚度為 50nm 並以 500°C 預熱，其矽膜最長熔化時間為 480ns，約試片置於室溫之最長熔化時間之 2.22 倍；當矽膜厚度為 90nm 並以 500°C 預熱，其矽膜最長熔化時間更高達到 711ns，約試片置於室溫之最長熔化時間的 2.06 倍，並製作出 3μm 之晶粒。

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] G. Ivlev, E. Gatskevich, V. Chab, J. Stuchlik, V. Vorlicek, and J. Kocka, *Appl. Phys. Lett.* 75 (1999) 498.

[2] Levinson J, Shepherd F R, Scanlon P J, Westwood W D, Este G and Rider M J. *Appl. Phys.* 53 (1982)1193.

[3] P. Ch. Van Der Wilt and R. Ishihara, *Phys. stat. sol.(a)*,166 (1998) 619.

[4] Y. Morita and T. Noguchi, *Jpn. Appl. Phys.* 28

(1989) 309.

[5] Wen Chang Yeh, "Study of Excimer-Laser-Processed Polycrystalline-Silicon Thin-film Solar Cells," Ph.D. Dissertation of Department of Physical Electronics, Tokyo Institute of Technology, July (2000).

[6] 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).

[7] 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 " , *The twelfth international workshop on Active-Matrix Liquid-Crystal Display(AMLCD 2005)* , July 6-8,2005 Kanazawa Bunka Hall, Kanazawa, Japan, July 6 to 8, (2005).

[8] 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

[9] 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

[10] 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 ",*Progress on Advanced Manufacture for Micro/Nano Technology 2005* pp.337~342 , 2005 IEEE/ASME International

Conference on Advanced Manufacture ,
November 28-December 02 ,Taipei, R.O.C.
(2005)

- [11] Wenchang Yeh, Chun-Jun Zhuang, Guozhao Chen, Chil-Chyuan Kuo, Jeng-Ywan Jeng, "Relations of melt duration of Si film during excimer laser annealing on lateral growth distance and crystallinity within a grain" 2nd International TFT conference, Fukuoka, Japan, Jan(2006).
- [12] Im, J. S., Kim, H. J., and Thompson, M. O., Applied Physics Letters 63, 1969(1993).
- [13] 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, Japanese Journal of Applied Physics 30,3700(1991).
- [14] L. Mariucci, A. Pecora, G. Fortunato, C. Spinella, C. Bongiorno, "Crystallization mechanisms in laser irradiated thin amorphous silicon films," Thin Solid Films 427 (2003) 91.

