多層薄膜構造へのレーザ照射時の温度分布解析*

木 山 精 一** 広 野 豊*** 細 川 弘***
守 口 忠 仁*** 中 野 昭 一*** 大 隅 正 人**

Temperature Distribution Analysis in Multi-layer Thin Film Structures
by Laser Beam Irradiation

Seiichi KIYAMA, Yutaka HIRONO, Hiroshi HOSOKAWA, Tadahito MORIGUCHI,
Shoichi NAKANO and Masato OSUMI

A numerical simulation approach for the evaluation of temperature distribution analysis in multi-layer thin film structures during laser irradiation, such as the laser patterning of a-Si solar cells and the laser annealing of silicon on insulator (SOI) device, is introduced. In order to analyze more correctly and realistically, temperature dependence of material constants for each layer and latent heat during phase change has been taken into account, and the motions of heat conduction during laser irradiation have been made clear by solving the three dimensional non-linear and transitive heat conduction equations using the finite difference method. Results have been compared with experiments, and it has been confirmed that the numerical simulation approach was very useful for laser processing.

Key words: temperature distribution analysis, multi-layer thin film structure, laser beam, temperature dependence, numerical simulation, finite difference method, laser processing

1. 緒 言

レーザ加工は、電子デバイスや半導体技術において重要なプロセスのひとつになりつつあるが、レーザ照射時の温度、特にその分布の制御が決め手になる。この温度分布は主にレーザビームの形状、走査条件、多層薄膜の物性、膜厚や積層構造によって決定されるが、このような複雑な条件下で温度分布を正確に測定することは困難で、数値シミュレーションが今後のプロセス制御に重要な役割を果たしていくと考えられる。従来からレーザ加工の熱解析はいくつか試みられてきたが、アモルファス太陽電池のレーザパターニング¹⁾や3次元回路素子のレーザアニーリング²⁾等において現実の問題となる多層薄膜構造に関するシミュレーションの例は少ない。

また、これまで、材料物性の温度依存性を考慮した例は少なく、そのひとつの計算例として、Moody and Hendel³⁾やBurgener and Reedy⁴⁾によってグリーン関数を用いた三次元温度分布計算法が提案され

ている。この計算法は光反射率の温度分布依存性が正しく考慮されていないため、光反射率が大きく変化する場合以上の場合には問題の多い計算法となる。

本報では、多層薄膜構造のより現実に近い解析を行うために、多層薄膜の光干渉効果、熱伝導係数、比熱の温度依存性、相変化に伴う潜熱及び光反射率の変化を考慮した三次元座標系における熱伝導方程式を有限差分法を用いて解き、固液界面の形状及び時間的・空間的な温度分布解析を可能にした。これらの計算結果と実験との対比を試み、本温度分布解析が多層薄膜構造のレーザ加工における有力な解析手段であることを明らかにした。

2. レーザ照射時の多層薄膜温度分布解析の基本概念

多層薄膜構造体にレーザ加工を行う場合、(1)異種物質の積層、(2)薄膜性、(3)選択性などの従来になく困難な問題が存在し、加工原理が複雑になってくるため、レーザ照射パワーの精密なコントロールを始め、その他のレーザ条件を最適に制御し、それぞれの材料特性をよく把握した上で、各因子と加工特性との相関が明確にされなければならない。しかし、各因子が複雑に干渉しているため実験的な解析では困難な面

* 原稿受付 平成2年1月30日。1989年度精密工学会秋季大会学術講演会(平成元年11月6日)にて発表

** 正 会 員 三洋電機(株)(守口市京阪本通2-18)

*** 三洋電機(株)

Fig. 1 Model of the temperature distribution analysis in multi-layer thin films in laser irradiation

Fig. 2 Structure of the temperature distribution analysis system in multi-layer thin films by laser irradiation

もある。

このようなレーザによる高度な加工をさらに確立した技術として発展させるためには、加工機構に立脚した理論解析が必要である。

そこで、レーザ加工が光の吸収による熱的加工法であることに着目して、多層薄膜のレーザ加工における温度分布解析の計算機シミュレーションを行った。

図1に、多層薄膜レーザ加工温度分布解析モデルを示す。直角座標系 (x, y, z) において時間とともに変化する強度 $I(x, y, t)$ のレーザビームを反射率及び熱定数が温度に依存する多層薄膜構造に照射すると仮定する。

図2に、本多層薄膜温度分布解析のシステム構成を

Fig. 3 Model of the optical interference in multi-layer thin films

示す。まず、光学的解析部で、多層薄膜構造にレーザビームを照射した場合の各層内での光の挙動を多重干渉理論より導き、次に熱的解析部で各層内での吸収された光による熱の発生を考慮に入れた三次元非定常熱伝導方程式を有限差分法を用いて解くことにより、多層薄膜構造の空間的・時間的溫度分布を求めることができた。

3. 多層薄膜における光多重干渉理論を用いたレーザ強度解析

レーザ加工は、加工物表面でレーザビームの一部が反射し、残りの光エネルギーが加工物中に入射して順次吸収され、熱エネルギーに変換され発熱し、物質変化を起こす機構よりなる。そこで、多層薄膜における光エネルギーの反射、吸収、透過の挙動を解析する。

図3に示すような屈折率 n_j^* 、厚さ d_j ($j=0, 1, \dots, n+1$) の多層薄膜に電磁波が入射した場合、Maxwellの電磁方程式に境界条件を与えて解けば多層薄膜の繰返し反射（多重干渉）を全部考慮した解が得られる。薄膜を重ね合わせることは四端子回路を縦続接続することに対応するので、多層薄膜の計算はマトリクスの積を求める計算になる⁴⁾。計算の手法を以下に示す。

n 層膜構造に対しては、電界 E_{n+1}^+ と E_0^+ の関係で透過係数、 E_0^- と E_0^+ との関係で反射係数が求まる。そこで、図3より n 層の多層薄膜の場合、これに対応するマトリクスの形は、

$$\begin{pmatrix} E_0^+ \\ E_0^- \end{pmatrix} = \frac{(C_1)(C_2) \cdots (C_{n+1})}{t_1 t_2 \cdots t_{n+1}} \begin{pmatrix} E_{n+1}^+ \\ E_{n+1}^- \end{pmatrix} \quad (1)$$

ここで、

$$(C_m) = \begin{pmatrix} e^{i\delta_{m-1}} & \gamma_m e^{i\delta_{m-1}} \\ \gamma_m e^{-i\delta_{m-1}} & e^{-i\delta_{m-1}} \end{pmatrix}$$

の関係が成り立つ。ここで、 $n+1$ 番目の媒体では、負方向の波が存在しないため、 $E_{n+1}^- = 0$ となる。これより、 E_{n+1}^+ によって E_0^+ と E_0^- を表すことができ、反射、透過係数は簡単な形となる。

式のマトリクスを次のように書き換えると、

$$(C_1)(C_2)\cdots(C_{n+1}) = \begin{pmatrix} a & b \\ c & d \end{pmatrix} \quad (2)$$

すなわち、式 (1), (2) より振幅反射率及び振幅透過率は

$$R = \frac{E_0^-}{E_0^+} = \frac{c}{a}, \quad T = \frac{E_{n+1}^+}{E_0^+} = \frac{t_1 t_2 \cdots t_{n+1}}{a} \quad (3)$$

となる。また、エネルギー反射率、エネルギー透過率は、

$$\left. \begin{aligned} \bar{R} &= \frac{(E_0^-)(E_0^-)^*}{(E_0^+)(E_0^+)^*} \\ \bar{T} &= \frac{n_{n+1}}{n_0} \frac{(E_{n+1}^+)(E_{n+1}^+)^*}{(E_0^+)(E_0^+)^*} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

となり、すなわち次式として表される。

$$\left. \begin{aligned} \bar{R} &= \frac{cc^*}{aa^*} \\ \bar{T} &= \frac{n_{n+1}}{n_0} \frac{(t_1 t_2 \cdots t_{n+1})(t_1^* t_2^* \cdots t_{n+1}^*)}{aa^*} \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

また、エネルギー吸収率 $\bar{A}$ は、

$$\bar{A} = 1 - (\bar{R} + \bar{T}) \quad (6)$$

で表されるので、式 (5), (6) を用いて多層薄膜内のレーザービームの強度分布を解析することができる。

4. 多層薄膜へのレーザー照射時の熱伝導解析

4.1 解析モデルと計算方法

図 4 にレーザービーム強度が多層薄膜内部で変化していく様子を示す。照射したレーザービームは第 1 層目の表面で、Maxwell の電磁方程式を用いた多層薄膜の多重干渉計算⁵⁾ から求まる反射率 $R(T)$ で一部反射し、残りは多層薄膜に入射した後、吸収により指数関数的に減衰する。故に、第 k 層目の面 Z におけるレーザービーム強度は次式で表される。

$$W(x, y, z, T) = (1 - R(T))I(x, y, t) \times \exp\left(-\sum_{i=1}^{k-1} (a_i - a_k)d_i + a_k z\right) \quad (7)$$

ここで、 $I(x, y, t)$: 照射レーザービーム強度、 a_i : 第 i 層の吸収係数、 d_i : 第 i 層の膜厚。

従って、各薄膜内部で単位時間、単位体積あたり発生する熱量 $Q(x, y, z, t, T)$ は

Fig. 4 Model of intensity distribution analysis of laser beam in multi-layer thin films

$$Q(x, y, z, t, T) = -\frac{\partial W(x, y, z, t, T)}{\partial z} \quad (8)$$

また、本解析では照射レーザービーム強度(密度)は、時間依存であると考えており、時間軸に対してガウス分布でも、一様分布でも取り扱うことが可能である。

4.2 三次元場の非線形非定常熱伝導方程式と有限差分法

多層薄膜へのレーザー照射による内部発熱や熱伝導に起因する熱エネルギー収支を表す三次元非線形非定常熱伝導方程式は、式 (9) で表される⁶⁾。

$$\rho C \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(k \frac{\partial T}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(k \frac{\partial T}{\partial z} \right) + Q \quad (9)$$

ここで、 $T = T(x, y, z, t)$: 温度、 ρ : 密度、 $k = k(T)$: 熱伝導係数、 $c = c(T)$: 比熱、 t : 時間、 $Q = Q(x, y, z, t, T)$: 発熱量。

熱放射、対流熱伝達はないと考えると、式 (9) に課せられる境界条件は、

$$(i) \text{ 温度固定境界において} \quad T = T_0 \quad (10)$$

$$(ii) \text{ 熱流束の指定されている境界において}$$

$$k \left(\frac{\partial T}{\partial x} + \frac{\partial T}{\partial y} + \frac{\partial T}{\partial z} \right) + q_0(x, y, z, t) = 0 \quad (11)$$

のいずれかを考慮することになる。

また、初期条件は、

$$\text{領域内, } t=0 \text{ において} \quad T = \phi_0 \quad (12)$$

とした。ここで、 T_0 は固定温度、 q_0 は境界熱流束、 ϕ_0 は初期温度である。

ところで、2 層以上の多層薄膜の熱伝導挙動について、解析的に式 (9) を解くことは非常に困難である。そこで、有限差分法を用いた近似的な解法を用いた⁷⁾。

まず、空間の微小領域（以下要素と呼ぶ）について式(9)を積分すると、要素 n とこれを囲む要素 m （複数）との間に以下の差分式が得られる。ここでは簡略化のため発熱 Q を無視している。

$$\left. \begin{aligned} \Delta T_n \frac{C_n}{\Delta t} &= \sum_m U_{n,m} (\bar{T}_m - \bar{T}_n) \\ &\quad + \sum_b U_{n,b} (T_b - \bar{T}_n) \\ U_{n,m} &= A_{n,m} \times \left(\frac{\Delta r_n}{k_n} + \frac{\Delta r_m}{k_m} \right)^{-1} \\ C_n &= \rho c V_n \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

ここで、 T_b ：外部温度、 V_n ：要素 n の体積、 $A_{n,m}$ ：要素 n と m の伝熱面積、 Δr_n ：要素 n の代表点から境界への距離。

また、式(13)において総和 $\sum$ は要素 n に結合するすべての内部熱接触と外部熱接触を表している。式(13)の $(\bar{\quad})$ は時間増分 Δt における平均値を示し、補間係数 f によって以下のように定義される。

$$\bar{T}_n = T_n + f \Delta T_n \quad (14)$$

補間係数 f は各要素ごとに 0~1 の間で決められ、 T_n 、 $T_n + \Delta T_n$ はそれぞれ時間 t 、 $t + \Delta t$ における要素 n の温度を表す。式(14)を使って式(13)を ΔT_n について書き直すと

$$\begin{aligned} \Delta T_n &= \frac{\Delta t}{C_n} \left[\sum_m U_{n,m} \cdot f (\Delta T_m - \Delta T_n) - \sum_b U_{n,b} \cdot f \Delta T_n \right] \\ &\quad + \frac{\Delta t}{C_n} \left[\sum_m U_{n,m} (T_m - T_n) + \sum_b U_{n,b} (T_b - T_n) \right] \end{aligned} \quad (15)$$

となる。式(15)がすべての要素について成立するので、 ΔT_n 、 ΔT_m に関する連立方程式を解くことになる。

さらに、内部発熱 Q が時間依存もしくは温度依存の場合、及び熱容量 ρc 、熱伝導係数 k が温度依存である場合も、点列データとして与えることができる。

また、溶融、凝固の相変化を次式で扱っている。

$$\rho \Delta H_m \left(\frac{\partial r_m}{\partial t} \right) = k_1 \left(\frac{\partial T_1}{\partial r} \right)_{r_m} - k_2 \left(\frac{\partial T_2}{\partial r} \right)_{r_m} \quad (16)$$

$$T_1(r_m) = T_2(r_m) = T_m \quad (17)$$

ここで、 ΔH_m ：相 1 から相 2 に相変化する時の潜熱、 r_m ：相 1 と相 2 の界面の座標軸 r 上の位置、 T_m ：相変化する時の温度。

従って、融点と潜熱を与えると相変化の効果を計算することが可能となる。

有限差分法による三次元非線形非定常熱伝導計算のフローチャートを図 5 に示す。

Fig. 5 A flow chart for calculating the temperature distribution

5. 計算結果

計算に用いた多層薄膜及び基板の材料物性値を表 1 及び図 6 に示す。これらの材料物性のうち、比熱、熱伝導係数、光反射率を温度依存として扱い、さらに、溶融時の相変化に伴う潜熱を考慮した。

5.1 多層薄膜における光多重干渉計算結果

図 7 は、ガラス基板上に透明電極 (TCO) を 2000 Å 形成した後 a-Si 膜を形成した構造 (a-Si/TCO/ガラス構造) において、a-Si 膜厚による反射率の変化を異なる波長に関して計算した結果を示している。図から明らかなように、長波長の 1.06 μm の場合、a-Si 膜厚により反射率は周期的に変化して光干渉効果が明確に現れている。

一方、短波長の 0.53 μm では a-Si 膜の吸収係数が

Table 1 Physical properties of each materials

	Specific heat J/g·K	Density g/cm ³	Thermal conductivity J/cm·K·s	Melting point K	Latent heat J/g	Boiling point K	Refractive index (at 1.06 μm)	Absorption coefficient cm ⁻¹ (at 1.06 μm)
Glass	0.711	2.50	See Fig. 6	1 113**	—	—	1.46	—
TCO	0.418	6.64	See Fig. 6	1 898	46	2 273	1.95+0.002i	250
a-Si	0.952+0.171 · T*/685	2.33	See Fig. 6	1 200	1 250	2 628	3.8+0.025i 4.3+0.433i (at 0.53 μm)	3 000 100 000 (at 0.53 μm)
Al	0.753+0.49 × 10 ⁻³ T*	2.70	See Fig. 6	933	390	2 513	2.0+12.0i	—

* Absolute temperature, ** Softening point

Fig. 6 Thermal conductivities for each material (TCO ; Transparent Conductive Oxide)

Fig. 7 Calculated reflectance in a-Si/TCO/glass structure dependence on a-Si film thickness at each laser wavelength

大きくなるため、膜厚の増加に従って干渉効果が弱まり、反射率は一定値に近付くことが分かる。

また、Al/TCO/ガラス構造のように金属膜の場合は、吸収係数が非常に大きいので干渉効果は100 Å以上ではほとんどなく、反射率は一定値(92%)に収束することを確認している。

5.2 半径方向の温度分布

a-Si (5 000 Å)/TCO(2 000 Å)/ガラス 及び Al

Fig. 8 Relationship between laser spot radius and threshold power density for surface melting

(5 000 Å)/TCO(2 000 Å)/ガラス構造にレーザパルス半値幅 80 ns のガウス分布レーザ (波長 0.53 μm) を照射した時のスポット半径と 160 ns 後表面が融点に達するのに必要な最小限のレーザパワー密度の関係を図 8 に示す。スポット半径が 20 μm 以上の場合、各膜構成についてレーザパワー密度はほぼ一定となる。一方、20 μm 以下になると半径方向への熱伝導が多くなり、中心部の温度上昇が抑制されるためレーザパワー密度は急激に増加する。特に、Al などの熱伝導係数が高い薄膜のレーザパワー密度が相対的に大きくなる。

5.3 物性の温度依存性とレーザパワー密度による深さ方向温度分布の相関

次に、a-Si(5 000 Å)/TCO(2 000 Å)/ガラス構造にパルス半値幅 80 ns でスポット半径 40 μm の均一強度分布をもった波長 0.53 μm のレーザビームを照射した時のレーザパワー密度とレーザ照射 160 ns 後のビーム中心部の深さ方向温度分布の関係を図 9 に示す。破線は室温での物性値を用いたものであり、実線は表 1 及び図 6 の温度依存の物性値を用い、熔融後の a-Si 膜の反射率 $R(T)$ を 0.7 とした。温度依存性を

Fig. 9 Relationship between laser power density and spatial temperature distribution in a-Si (5000 Å)/TCO(2000 Å)/glass structure

考慮した場合、レーザパワー密度に対してa-Si膜の融点までは比熱・熱伝導係数、融点以上では主に潜熱・反射率の影響により、温度依存性を考慮しない場合に比べて温度上昇が抑制されているが、この状態はa-Si膜の熔融後のほうが顕著である。図より、温度依存の場合領域(III)のパワー密度でa-Si膜表面が熔融しはじめ、領域(IV)ではa-Si膜全体が熔融し、さらに、領域(V)ではTCOにダメージが生じることを示している。

6. 実験結果と考察

数値計算シミュレーションで得られたレーザ照射時の多層薄膜構造内の温度分布の妥当性を検討するため、a-Si/TCO(2000 Å)/ガラスの多層薄膜構造により実験結果と比較した。

6.1 レーザパワー密度によるa-Si多層薄膜の変化

図9の計算結果を検証するため、実際の試料に同等のパワー密度のレーザビームを照射した。a-Si(5000 Å)/TCO(2000 Å)/ガラス構造にパルス半値幅80 ns、スポット半径50 μm のNd:YAGレーザ第2高調波(波長0.53 μm)を照射したときの表面光学顕微鏡写真を図10に示すが、(II)ではa-Si膜表面に幾何学的な変化が見られず、(III)では表面の熔融が観察された。さらに、(IV)ではa-Si膜がTCO上より選択的に除去されており、(V)においては露出したTCO上にダメージが観察された。この結果は図9の材料物性の温度依存性を考慮した計算結果と極めてよく一致しており、温度依存の効果が明確になった。

Fig. 10 Observation by optical microscope of a-Si (5000 Å)/TCO(2000 Å)/glass surface after laser irradiation

Fig. 11 Dependence of melting threshold power density on thickness of a-Si film

6.2 a-Si膜厚と熔融最小レーザパワー密度の相関

a-Si/TCO(2000 Å)/ガラス構造にパルス半値幅80 ns、スポット半径50 μm のNd:YAGレーザ第2高調波(波長0.53 μm)を照射したときのa-Si膜厚とa-Si表面が熔融するのに必要な最小レーザパワー密度の関係を図11に示す。実線は計算値、プロット点は実験値を示しており、レーザパワー密度はa-Si膜厚1000 Åの値で規格化している。レーザパワー密度は約2000 Åのとき最小となり、2000 Å以上では熱容量の増加、2000 Å以下では発熱量の減少のためレーザパワー密度が増加しているが、計算結果と実験結果はよく一致している。

以上の結果より、本シミュレーションは実験とよく一致し、多層薄膜構造のレーザ加工における有用な解析手段であることが確認された。

7. 結 言

多層薄膜構造へレーザ照射した場合の光多重干渉、物性値の温度依存性、相変化等を考慮した三次元温度分布解析を有限差分法を用いて可能にし、レーザパルス半値幅を 100 ns 程度とした場合以下の結論を得た。

- (1) レーザスポット半径が 20 μm 以上の場合は半径方向（横方向）の熱伝導を無視できるが、それより小さい場合は熱伝導係数の影響が顕著となり、三次元的な温度分布解析が不可欠となる。
- (2) 材料物性の温度依存性及び相変化時の潜熱を考慮することにより温度上昇が抑制され、より現実に近い温度分布解析が可能となった。
- (3) 計算結果は実験とよく一致し、レーザプロセスの有用な解析手段であることが確認できた。

謝 辞

本研究は工業技術院サンシャイン計画の一環として NEDO から委託され行われたもので、関係各位に感謝します。また、本研究を進めるにあたり、ご指導、

ご助言をいただきました大阪大学工学部精密工学科 森勇蔵教授に深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) S. Kiyama et al.: Laser Patterning of Multi-layer Structure in Integrated-type a-Si Solar Cell, Proc. 6th ICPE, Osaka, (1987) 715.
- 2) T. J. Stuly and J. F. Gibbons: The Use of Beam Shaping to Achieve Large-grain cw Laser-Recrystallized Polysilicon Amorphous Substrates, Appl. Phys. Lett., 39, (1981) 498.
- 3) J. E. Moody et al.: Temperature Profiles Induced by a Scanning cw Laser Beam, J. Appl. Phys., 53, (1982) 4364.
- 4) M. L. Burgener et al.: Temperature Distributions Produced in a Two-layer Structure by a Scanning cw Laser or Electron Beam, J. Appl. Phys., 53, (1982) 4357.
- 5) O. Heavens: Optical Properties of Thin Solid Film, Butterworths Scientific Publications, London, (1955) 66-80.
- 6) H. S. Carslaw and J. C. Jaeger: Conduction of Heat in Solids, 2nd ed., Oxford Univ. Press, London, (1959) 89.
- 7) 日本機械学会編: 熱と流れのコンピュータアナリシス, コロナ社 (1986).

情 報

(p. 1455 より続く)

ただ、この指数については「研究開発には基礎から実用化までのレンジの長短や規模の大小など相当の相違があるため、この結果が直ちに各分野、各産業の研究開発活動の効率を評価するものでない」としている。

今回の調査にあたった同研究所担当者は「技術動向を

できるだけ客観的にとらえるための方法としては、特許の登録データがある。しかし、実施化された技術の中から、社会的、経済的に大きなインパクトを与えたものを選ぶとすれば、表彰された技術を対象とすることが最も妥当な方法と考えられる」としている。(服部 敏夫)

年代別受賞技術の特徴