次世代TFT作製に向けたシリコン結晶化技術

東 和文¹, 平松 雅人^{1,†}, 松村 正清¹

¹(株)液晶先端技術開発センター (〒244-0817 神奈川県横浜市戸塚区吉田町292番地)

Crystallization Technology of Si Thin Films for Future TFTs

Kazufumi AZUMA,¹ Masato HIRAMATSU,^{1,†} and Masakiyo MATSUMURA¹

¹Advanced LCD Technologies Development Center Co., Ltd., 292 Yoshida-cho, Totsuka-ku, Yokohama, Kanagawa 244-0817

(Received April 20, 2006)

Thin film transistor, which had been in practical use with amorphous silicon (a-Si) as base material in 80's, blossomed into poly-Si TFTs by a driving force of the Excimer Laser re-crystallization technology. The feature of the Excimer laser fits for the lateral growth of Si thin films, i.e., its characteristics such as short wavelength, high power density, low coherency and short pulse enable the progress of the advanced "Phase Modulated Excimer Laser Annealing (PMELA)" method. We have developed a position-controlled large grain Si arrays process using the PMELA method. Excimer laser still requires many refinement to achieve the practical use of the "System displays".

Key Words: Excimer laser, Phase modulation, Si thin films, Crystallization, Thin film transistor

1. はじめに

Si薄膜に高光強度のレーザー光を照射して、Siを熔融・再結晶化させるレーザー結晶化法は、3次元集積回路を目指したSi積層結晶構造(SOI)形成技術として、1980年代から1990年代初頭にかけて盛んに研究されてきた。当時は連続発振のArイオンレーザーがその主流であったが、残念ながら結晶化過程を十分に制御できるには至らなかった。レーザー結晶化法が再び注目され始めたのは、1990年代に本格的に登場したノート型PCの表示装置がきっかけとなっている。すなわち、非晶質Si薄膜トランジスタ(a-Si TFT)駆動の液晶ディスプレイ(LCD)の応用が高精細分野へと広がった結果、a-Si TFTに比べて桁違いに高性能の多結晶Si TFTが要求されてきたからである。ここでは、3次元集積回路の研究で培われたこの技術が大いにヒントになったが、同時に、この休眠期間内に長足の進歩を遂げていたエキシマレーザーが強力な道具となった。

レーザー結晶化におけるエキシマレーザー利用の長所をTable 1に示す。実用的なエキシマレーザーは放電によって生じた励起状態の希ガス原子とハロゲン原子とが作る不安定な分子(Excited Dimer)が元のばらばらな安定状態に戻る際の誘導放射を利用する。代表的なエキシマレーザーには、希ガス原子とハロゲン原子の組み合わせに

よって、ArF(発振波長=193 nm), KrF(248 nm), XeCl(308 nm), XeF(351 nm)等がある。

これらの発振波長が短いので、レーザー光は数nm厚のSi薄膜にも高効率で吸収される。また、1 J/shotにも達する超高出力エネルギーのパルス発振であるので、大面積ガラス基板を高スループットで処理することが可能である。(現在の量産用のレーザーの仕様は1 J/shot, 300 Hz程度である。また、100 nm厚のSi膜を熔融させるには、レーザー光の表面反射や熱エネルギーのガラス基板への拡散を考慮しても、1 J/cm²程度の試料面上光強度でよい。したがって、450 mm×550 mmの大面積ガラス基板全面を1回照射するには、10 sを要しない)。

更にパルス幅が30 ns程度と極短パルス幅のパルス発振であるので、ガラス基板表面に堆積した100 nm程度の厚さのSi薄膜を瞬間的に融点以上に昇温・熔融しても、基板のガラスの温度上昇は極く僅かにとどまるという利点がある。すなわち、ガラスからのNa等の拡散を抑えるために、Si膜とガラスの間には1 μm程度のSiO₂膜が挿入されており、熔融Siと室温のガラスとの過渡温度差(約1000 °C)はこのSiO₂膜の表面層(100 nm程度)が吸収するので、ガラス基板に熱損傷が生じない。

通常、レーザー光は出射面において空間的な分布を持っているので、これを試料表面で均一化する必要があ

[†]現在の所属：東芝松下ディスプレイテクノロジー(株) (〒366-0032 埼玉県深谷市幡羅町1-9-2)

[†]Present address: Toshiba Matsushita Display Technology Co., Ltd., 1-9-2 Hatara-cho, Fukaya, Saitama 366-0032

Table 1 Feature of a Excimer laser for Poly-Si TFT processes.

Short wavelength	Highly efficient absorption for Si thin films.
High power	Advantageous for large area processing. High throughput.
Low coherency	"Appropriate" low coherency enables homogenization using a cylindrical lens array unit.
Short pulse	Melting /recrystallization of Si thin films without thermal damage to a glass substrate.

る。エキシマレーザーは、多モード発振であって、しかも光利得が極めて高いために低 Q の共振器を用いることから、出射光には空間的並びに時間的な干渉性が低い。この特徴から、Fig. 1に示すように、まず出射光を多数の細いビームに分割して、各細線ビームを試料の照射領域全面に拡大すれば、各細線ビームのエネルギーを重ね合わせることができるので、試料面上の照射領域内光強度を均一にすることができる(このような光学素子はホモジナイザ¹⁾と呼ばれており、半導体の露光器やプロジェクタ等にも使われている)。

これら特徴のために、Si膜の温度制御が比較的容易で、溶融・再結晶化過程を制御しやすいことが、短期間にエキシマレーザー結晶化(ELA)技術を実用レベルにまで押し上げた²⁻⁴⁾といえる。

量産に用いているELA法では、Fig. 1のようにホモジナイザを通過後に長尺・狭幅のビームに整形して、1回照射と、照射幅の1/20程度のステップの基板の微小移動とを繰り返すことにより、基板面に堆積されたSi膜を結晶化する。エキシマレーザーには、パルス・パルス間のエネルギー揺らぎが数%以上もあるが、これが結晶化膜の物性に及ぼす悪影響は、この多数回照射によって抑制される。また、多数回照射によって結晶化特性の履歴現象(特に初回の照射と2回の照射では物性が変化する)も抑制される。このような工夫を加えることによって、実用上必要な均一性を確保している。

Fig. 1 Principle of a cylindrical lens array homogenizer and a beam path for the ELA.

しかしながら、現在量産に用いられているELA法では広い面積に均一強度のレーザー光が照射するので、照射領域内では、一様に溶融が生じて結晶核が高密度に発生し、これら結晶核が照射の終了に伴って同時に成長を開始する。結晶核同士の衝突によって結晶成長は直ちに停止するので、得られる結晶粒径は100 nm程度と極めて小さい。一方、TFTの大きさは数mm程度であるから、キャリア(電子或いは正孔)はTFTの電極(ソースとドレイン)間を移動する間に数十回も結晶粒と結晶粒の境界(粒界)を横切ることになる。キャリアの運動が粒界で頻繁に妨げられるために、キャリアの移動度が低く、このことがTFTの超高性能化の足枷となっている。超高性能TFTで構成された各種回路・システムをガラス基板上に作製するためには、Siの大結晶粒化が求められている。

本稿では、基板の所望の位置に大粒径Si結晶の形成が可能な、高度な位置制御ELA技術を実現するための我々のアプローチについて紹介する。

2. 位相変調エキシマレーザーアニール法

レーザー溶融・再結晶化法は、用いるレーザーが連続発振型か、パルス発振型か、によって2分される。連続発振レーザーを用いた場合には、試料ステージをゆっくりと動かして、Siの完全溶融領域を移動する。結晶を横方向に成長させることができるので、長い結晶粒を容易に作製できる。しかし、このレーザー光は、いまのところ、可視・赤外波長であって、光エネルギーの利用効率が低い。また光出力自体も低い。Si膜が長時間をかけて昇温されるので、基板のガラスの温度上昇にも細心の配慮が必要である。しかも強い干渉性を持っているため、試料面上の光強度分布を微細に制御・調整することが難しい。それでも、試料を高速でスキャンすることにより、溶融・再結晶化を連続的に生じることによって成功しており、10 μm を越す長さの結晶粒を作ることができるようになってきた。実用化には、短波長化、大出力化、干渉性制御などとともに、指定した位置に結晶粒を作る工夫が望まれる。

エキシマレーザーは、10⁸ W程度の巨大パワーの紫外光を放射するパルスレーザーである。このレーザーは、ステッパ装置に使われていることから判るように、微細な光強度分布を作ることが可能である。しかし従来のELA法では、均一な光強度分布を用いたために、大きな結晶粒を作ることではできなかった。我々は、エキシマレーザー光波の位相を制御するエキシマレーザーアニール(Phase Modulated Excimer Laser Anneal: PMELA)法によって試料面上に光強度分布を生じさせ、十分な長さの横方向成長と位置制御とを両立させることに成功した⁵⁻¹²⁾。

2.1 エキシマレーザーアニールによる横方向成長

現在のELA量産技術では、Fig. 2 (a)に模式的に示すように、光パルスの照射が終了して固化が始まると、Siの固液界面付近に核が高密度に発生する。時間の経過に伴ってSi膜から熱が失われるので、これらの核は四方に成長し

Fig. 2 Schematic diagram of a melting / recrystallization.

て結晶粒になる。結晶粒は、隣の結晶粒とすぐに衝突するので、横方向には殆ど伸びない。この結果、その粒径は100 nm程度と極めて小さい。

光強度を不均一にして、核の発生領域を局在化すれば、結晶は横方向にも成長する。Fig. 2 (b)はその概念図である。強度が直線的に変わる光ビームを照射すると、Si膜には光強度分布に対応した分布で熱が蓄えられる。低光強度の領域(図の左側)では、Si膜は部分熔融に留まるが、高光強度の領域では、Si膜は完全に熔融して、しかもその温度が光強度と共に増す。光パルスの終了と同時に、Si膜の蓄えた熱が基板に向けて流出するので、Si膜の温度が下がり始める。Siの部分熔融領域では、核が固液界面付近に高密度に発生して、それらが同時に成長を始める。結晶粒同士が頻繁に衝突するので、従来のELA膜と同様に、得られる粒径は小さい。一方、Siの完全熔融領域では、固相領域が存在しないので、核が発生できない。Siは融点以下まで温度が下がった過冷却の液体状態を保つ。そして、部分熔融領域の端で発生した核が、何者にも邪魔されずに、この過冷却液体Si内を横方向に成長して巨大になる。

2.2 大結晶粒アレイの形成原理

結晶粒の横方向成長現象を利用して大結晶粒のアレイを形成するには、

- (1) ごく狭い領域内のSi膜を部分熔融状態にして、その点に1個だけ核を発生させること
- (2) 核の発生箇所を取り巻く完全熔融領域内には核の発生箇所から直線的に上昇する温度分布を作って、横方向成長を継続させること
- (3) 試料構造を最適化して、Si膜が高温の熔融状態にある時間を延伸すること

が必要である。(1)と(2)の仕様を兼ね備えた光強度分布の概略をFig. 3に示す。低光強度・小面積の領域で核が発生する。この箇所の光強度が高すぎるとSiが完全熔融するので、核発生を制御できない。また光強度が低くすぎると、この箇所の周辺部でも部分熔融状態が生じるから、そこで大量の核が同時発生してしまう。したがって、この箇所の光強度を最適値に制御する必要がある。なお、成長領域内では、核が横方向に順調に成長していくように、光強度を滑らかに増加させる。

光強度分布を微細に制御する技術は、微細加工を目指して開発されてきた。しかしこの露光技術は、本質的に

Fig. 3 Light intensity distribution suitable for large-grain crystalline arrays.

は光強度の2値制御技術である。一方、大結晶粒アレイの形成には、アナログ的な光強度制御が必要である。したがってこのPMELA法に必要な位相変調素子を含む光学系の特性は、露光装置に用いられるマスクを含む光学系の特性とは、類似点は多いが、様々な面で異なる。

3. 位相変調素子

PMELA法は、Fig. 4に示すように、近接法と投影法に大別できる。試料のごく近傍に置いた位相変調素子が引き起こす回折現象を用いる近接法(Fig. 4 (a))は、原理検証には適するが、試料と位相変調素子との間隙を精密に制御する必要があるという装置上の問題、試料からの飛沫が位相変調素子を損傷するというプロセス上の問題、などがあって、実用性に欠ける。位相変調素子の投影像が発生する回折現象を用いる投影法では、光学系の特性が投影像に影響する。近接法の延長線上で考えれば、Fig. 4 (b)のように、この光学系の影響による“ボケ”がきわめて少ない投影像を、試料から有限の間隔だけ離して、作る方法が思い浮かぶ。これら既存の方法に対して、本研究では、次に述べるように、新しい方法を開発した。すなわち、光学系の影響を積極的に活用して、Fig. 4 (c)に示すように、投影像を試料表面に結像させた。そして、投影像の強度分布を任意に制御できる新位相変調素子と光学系の開発に注力した。

幾何光学的に理想的な収差のない光学系を実現する技術は既に完成している。しかしこの理想光学系でも、その投影像には光の波動性に原因する“ボケ”が残る。波動光学によると、投影像の任意の一点に集まる光線は、幾何

Fig. 4 Optical systems for PMELA.

光学的な光源位置を中心とした“Airy disk”と呼ばれる円盤状領域内に存在する源から放出された光線の総和と考えて良い。すなわち投影像の光強度は、Airy disk内の光源の平均値から求まる⁹⁾。なお、Airy diskの直径 d は、たとえば $NA = 0.15$ の投影光学系で $\lambda = 308 \text{ nm}$ (XeClレーザー光を想定)の場合には、 $d = 2.5 \mu\text{m}$ である。

上述の波動光学の知見を基礎にて、単板位相変調素子の設計法を確立した。設計例をFig. 5に示す。素子は石英板製であって、その表面にはAiry diskの直径 d に比べて小さな間隔で多数の凹凸が作られている。石英の高い屈折率のために、その凸領域を横切った光線には位相遅れが生じる。逆に、凹領域を通過した光の位相は進む。素子表面に生じた位相分布によって回折現象が生じる。大きな角度で回折した光線は小さな孔(瞳: NA に相当する)を持った投影光学系を通過できない。回折光の一部のみが試料に到達するので、試料表面上の一点における光の振幅と位相は、位相変調素子表面の当該Airy disk内における凹凸段差並びに凸領域と凹領域の面積割合によって変化する。すなわち、凹領域と凸領域の占める面積割合とその段差を設計することにより、ほぼ任意の試料表面上光強度分布が得られる。たとえば、Fig. 5に示した平面図の上下方向に沿って位置を移動すると、当該Airy disk内の状況はゆっくりと変化する。したがって、光強度は二等辺三角形形状に周期的変化をして、その最低値は、凹凸領域の面積割合が最も多い付近に生じる。一方、平面図の左右方向に沿って考えると、Airy disk内の状況は、 $5 \mu\text{m}$ 毎に急激な変化をする。特にこの変化は、上下方向に沿った光強度分布が最低になる付近で局所的に激しく変化(減少)する。

光強度分布シミュレーションの結果をFig. 6に示す。狭い楕円状領域の光強度は周囲領域のその半分程度になっており、Fig. 3に示した光強度分布が実現されている。

4. 大結晶粒のアレイ形成技術

レーザー結晶化では横方向成長速度が高々 10 m/s であるから、十分な横方向成長距離を確保するためには、成長

Fig. 5 Single-plate phase shifter for a large grain Si arrays.

Fig. 6 Simulation of the light intensity distribution.

時間、すなわちSi膜の溶融時間を長くしなければならない。そのためには、(i)レーザー光照射終了直後にSi膜近傍に蓄えられた熱エネルギーを増すこと、(ii)この熱が流出する速度を抑えること、が重要である。主な熱流出機構は、Si膜内を横方向に伝わる伝導流である。この抑制にはSi膜を薄くする以外にない。Si膜が蓄える熱量はその膜厚に比例する。Si膜の薄膜化により減少する蓄熱容量は、Si膜の上にレーザー光を適量だけ吸収して発熱するキャップ層を載せることで補完できる。

Fig. 7は膜厚 50 nm のSi膜にV字型光強度分布の光を照射して得られた1次元結晶粒のSecco etching後の平面SEM像を示す。キャップ層の蓄熱効果で、結晶成長距離を延伸させている。単純な SiO_2 キャップ層では蓄熱効果が不十分であって、光吸収性のキャップ層が有効である。キャップ層組成の最適化で横方向成長距離を2.5倍以上延伸できることがわかった。

以上のようにシリコン膜厚に最適な蓄熱層としてのキャップ層の組成を決定し、2次元大結晶粒アレイの形成を試みた。Fig. 8はFig. 5に示した位相変調素子を用いて $5 \mu\text{m}$ ピッチのホームベース状の結晶粒アレイを成長した結果を示す。狭い楕円状の低光強度領域では多数個の核が発生した。この領域の両端付近で発生した二つの核はそれぞれの前方にある完全溶融したSi内を成長した。その際、前方だけでなく、両側にも広がるので、ホームベース状の結晶粒が対で形成されている。この対状のホームベース状大結晶粒の径はそれぞれ $4 \mu\text{m}$ 程度であった。一方、核発生領域内の中央付近で発生した核は、互いに衝突しながら、それぞれの側面にある完全溶融領域内を一

Fig. 7 Elongation of the growth length.

Fig. 8 SEM image of the pentagonal-shaped large grain arrays.

次元的な成長をした。このため、大結晶粒の充填率は80%程度であった。結晶組織を電子線後方散乱回折パターン法(Electron Back Scattered Diffraction Pattern: EBSP)で評価した。EBSPのパターンから双晶の単結晶粒であると考えた場合の単結晶領域をFig. 9に示す。ホームベース状の大単結晶粒は40%程度を占めていた。残りは2~4個の三角形形状の結晶粒より作られていた。光強度分布の窪み領域を更に狭めることにより、単結晶粒の占める割合を高めることができると考えている。

5. まとめ

エキシマレーザーは短波長、高出力、低干渉性、短パルスという特長からSi薄膜の低温レーザー結晶化に最適なレーザーである。そのエキシマレーザーを用いたELA法において見出された横方向成長モードは、高度なPMELA法の中で更に進化し、結晶成長距離の延伸だけでなく、その形状制御、粒界低減等に新しい可能性を与えている。

しかしながら、ここで紹介したプロセス技術以外にも多くの解決すべき残課題がある。すなわち、エキシマレーザーのメンテナンス簡便化、出力エネルギー揺らぎの抑制、発振スペクトル狭幅化、発振周波数向上、発振パルス幅延伸等が要望されている。光学系に関しても、偏波面制御、光学系の許容光強度の向上、光学系の大口徑化・高NA化等が必要である。

これらの課題が解消されることで、位置を制御した大結晶粒アレイが量産レベルで実現可能となり、TFTとして的大幅な特性改善が期待できる。さらにはLCD基板上に高機能のTFT回路を実現することにより、ユビキタスネッ

Fig. 9 Grain map of the pentagonal-shaped array by EBSP analysis.

トワーク社会の発展を益々加速してゆくものと期待される。

謝 辞

本研究は、経済産業省の資金を基に(株)液晶先端技術開発センターが受託したNEDOの課題設定型産業技術開発費助成金「エネルギー使用合理化液晶デバイス・プロセス研究開発」に関するもので関係各位に感謝する。

参考文献

- 1) D. Basting and G. Marowsky (Eds.): *Excimer Laser Technology* (Springer, Göttingen, 2004) p. 130.
- 2) T. Sameshima and S. Usui: Mater. Res. Soc. Symp. Proc. **71** (1986) 435.
- 3) D-H. Choi, K. Shimizu, O. Sugiura, and M. Matsumura: Jpn. J. Appl. Phys. **31** (1992) 4545.
- 4) J. S. Im and R. S. Sposili: Appl. Phys. Lett. **69** (1996) 2864.
- 5) K. Ishikawa, M. Ozawa, C. H. Oh, and M. Matsumura: Jpn. J. Appl. Phys. **37** (1998) 731.
- 6) C. H. Oh and M. Matsumura: Jpn. J. Appl. Phys. **37** (1998) 5474.
- 7) W. C. Yeh and M. Matsumura: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) 492.
- 8) C. H. Oh, M. Nakata, and M. Matsumura: Appl. Surf. Sci. **154-155** (2000) 105.
- 9) Y. Taniguchi, M. Matsumura, M. Jyumonji, H. Ogawa, and M. Hiramatsu: J. Electrochem. Soc. **153** (2006) G67.
- 10) T. Katou, Y. Taniguchi, M. Hiramatsu, K. Azuma, and M. Matsumura: Proc. IDW/AD '05 (Takamatsu, 2005) p. 1219.
- 11) M. Hiramatsu: Proc. IDW/AD '05 (Niigata, 2004) p. 325.
- 12) T. Katou, Y. Taniguchi, N. Akita, M. Jyumonji, H. Ogawa, M. Hiramatsu, and M. Matsumura: Proc. AM-LCD 05 (Kanazawa, 2005) p. 303.

レーザーワード

位相変調エキシマレーザーアニール (phase-modulated excimer laser annealing)

特定の強度分布を持ったエキシマレーザー光を非晶質Siである出発薄膜に照射して薄膜内に所望の温度分布を形成する。その結果として、熔融再結晶化に伴う結晶核発生と熔融Si内の結晶成長とを制御し、二次元位置制御した大結晶粒を形成する。従来のエキシマレーザーアニール技術では、空間的に均一な光強度のエキシマレーザー光

照射と数十mmのステージ移動を繰り返して、試料全面にわたって比較的粒径の揃った均一な多結晶(結晶粒径: ~0.1 mm程度)Si薄膜を作る。一方、PMELAでは最適化された光強度分布を有するエキシマレーザー光を1, 2回照射することによって、数mm径の位置制御したSi大結晶粒を照射領域に一括形成する。
(東 和文)