

令和元年6月14日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04334

研究課題名(和文) 大気圧プラズマジェットを用いたフレキシブル基板上単結晶シリコンCMOS技術

研究課題名(英文) Development of single-crystalline silicon CMOS technology on flexible substrate by atmospheric pressure thermal plasma jet crystallization

研究代表者

東 清一郎 (Higashi, Seiichiro)

広島大学・先端物質科学研究科・教授

研究者番号：30363047

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 6,400,000円

研究成果の概要(和文)：大気圧熱プラズマジェット(TPJ)をアモルファスシリコンに照射しつつ高速走査することで溶融領域からの横方向結晶成長を誘起する手法において、結晶成長面方位制御を目指し、超ハイパワーTPJ発生技術の開発、超高速走査法の開発、の2項目を両立する技術開発をおこなった。TPJ放電ガスとしてArにN<sub>2</sub>を添加することで125kW/cm<sup>2</sup>の超ハイパワーを達成するとともに、回転ステージを用いることで最大18m/sの高速結晶化を達成した。更に本手法で(111)に面方位制御された結晶成長が可能であり、回転軸と平行方向に微速移動し結晶化領域を重ねつつ溶融結晶化することで大面積に展開可能な連続結晶成長を達成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

大気圧プラズマ(TPJ)を超ハイパワー化する手法として窒素ガス添加という簡便な方法が劇的な効果をもたらすことを見出した。このハイパワーTPJにより従来達成できなかった超高速の結晶成長を実現することが可能となり、18m/sの走査速度でガラス上のアモルファスシリコンを結晶化することに成功した。またシリコン結晶の面方位を(111)に制御可能であることを見出し、これはフラットパネルディスプレイ等の大面積エレクトロニクスの性能を飛躍的に向上させうる技術として有用な知見を与える成果である。

研究成果の概要(英文)：Thermal plasma jet (TPJ) induced melting and growth of amorphous silicon films has been investigated to control the crystallographic orientation. Here, we developed 1) ultra-high-power TPJ by N<sub>2</sub> addition to Ar and 2) high-speed scanning of TPJ by the introduction of rotational stage. We succeeded in crystallization at a scanning speed of 18 m/s, and growth of (111) oriented silicon crystals. By slowly moving the rotational stage parallel to the axis, we have found continuous growth of silicon (111) grains beyond the stitching regions.

研究分野：半導体工学

キーワード：結晶成長 大気圧プラズマ

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

薄膜エレクトロニクスはフレキシブル、ウェアラブル、ワイヤレス、バッテリーレスといったキーワードに象徴される通り、様々な基板上において更なる高機能化を実現していくと期待されている。CMOS回路動作を達成しうるIV族系半導体薄膜は高機能と超低消費電力を両立しうるデバイス材料として現在既にスマートフォン向けのディスプレイに不可欠となっているが、これから更にデバイス高性能化の要求が高まることは間違いない。低温プロセスで異種基板上に高品質半導体結晶を形成するためには、基板への熱的影響を抑制しつつ大粒径結晶成長が可能な高速横方向成長が不可欠であり、結晶粒界の制御技術が長年研究されてきた。これまでに局所的に単結晶を形成することは達成されているものの、依然としてトランジスタ特性のバラつき抑制が不十分であり、粒内欠陥 (intragrain defects) と面方位制御技術開発が不可欠なステージに来ている。

### 2. 研究の目的

研究は、融液からの半導体結晶高速成長過程に関して、独自のその場観察手法に基づいた実験的アプローチにより粒内欠陥 (intragrain defects) 形成および面方位選択性発現メカニズムの解明と、それらの制御法を明らかにすることを目的とする。

### 3. 研究の方法

独自開発した非接触温度測定法と高速度カメラを用いた直接観察手法を併用することで欠陥形成メカニズムを明らかにすると共に、トランジスタの電気特性との相関を調べることで、融液における物質移動が粒内欠陥形成に及ぼす影響を明らかにすると共に、デバイス特性バラつき抑制の指針を得る。更に、超高速横方向結晶成長による面方位選択性の発現に着目し、モデルシミュレーションと実験を併用することでこれまで明らかにされてない優先配向メカニズムの理解と面方位制御手法の確立を目指す。得られた知見に基づき、フレキシブルガラス基板上に面方位および粒内欠陥制御された単結晶薄膜を形成し、これをチャンネルに用いたトランジスタで低電圧高速CMOS回路動作を達成することで、本研究提案の有用性を実証する。

### 4. 研究成果

大気圧熱プラズマジェット (TPJ) をアモルファスシリコンに照射しつつ高速走査することで、シリコン溶融領域からの横方向結晶成長を誘起する手法において、従来の4m/sの走査速度を大幅に上回る成長速度の達成を目指した。このためには、①超ハイパワーTPJ発生技術の開発、②超高速走査法の開発、の2項目を両立する必要がある。

まず①に関しては、TPJ発生に使用するガスの工夫によりハイパワー化を達成した。従来のArガス流量~3L/minに対して供給圧を高めることで18L/minまで流量を増加させることで、図1に示す様に80kW/cm<sup>2</sup>のパワー密度を達成した(雑誌論文2)。更に、ArにN<sub>2</sub>を少量添加したN<sub>2</sub>添加TPJでは最大125kW/cm<sup>2</sup>のハイパワー化を達成した(雑誌論文1)。

②に関して、超ハイパワーN<sub>2</sub>添加TPJによりアモルファスシリコンの結晶成長を実行するために、回転ステージを導入した。従来法はTPJ前面においてアモルファスシリコン試料をリニアステージで一軸走査しつつTPJ照射することで結晶化を行なうものであった。この場合、リニアステージの走査速度は最大で4m/sであった。これに対して、図2に示す回転ステージでアモルファスシリコン試料を走査しつつTPJ照射する手法を開発することで、走査速度を最大53m/sまで達成可能な実験装置を製作した。

上記①および②の実現によって超高速成長の実験をおこなった。厚さ100μmのフレキシブルガラス基板上に厚さ100nmのアモルファスシリコン膜をプラズマCVD法により堆積し、450°C1時間の脱水素処理をおこなった。この試料を図2に示す様に回転ステージのドラム側に貼りつけ、ステージを回転させつつ、回転軸と平行な方向(x方向)に移動させることで連続的な結晶化を達成できる実験をおこなった。x方向への移動速度を調整することで、一回転後にTPJが照射される位置を制御することができる。すなわち、1回目の照射と2回目の照射での重なりを変化させつつ結晶成長をおこなうことができる。

この方法で結晶化を行なったところ、従来の走査

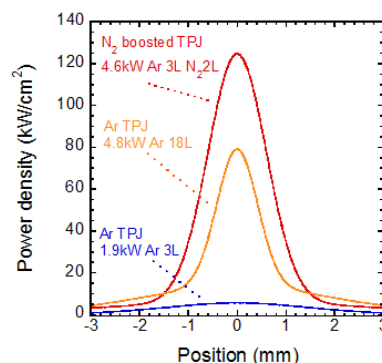


図1. TPJのパワー密度分布。  
従来のArTPJに対し、高流量のArTPJとN<sub>2</sub>添加TPJ。

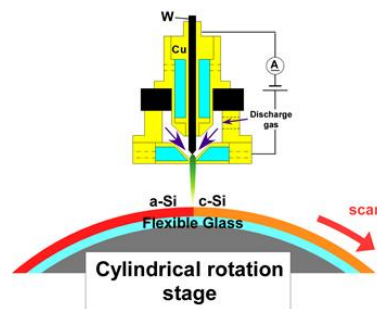


図2. 回転ステージを用いた高速結晶成長法の概念図。

速度 4 m/s に対して 18 m/s の超高速で結晶化が可能であることを確認した。また、回転ステージで熔融結晶化を行ないつつ、x 方向の移動速度を 3.0 mm/s (各走査における結晶成長領域の重なりが 50%) とすると、図 3 に示す様に (1 1 1) 結晶方位に揃った成長を達成した。図 3 左図は結晶化後のシリコン膜の光学顕微鏡像であり、縦の点線が照射毎の結晶成長の重なり部分を示している。すなわち、一番左側の領域が最初に TPJ で結晶化された後、ステージが一回転して次の TPJ 照射がおこなわれた際に右隣の領域が熔融・結晶化したことを意味する。ここで注目すべきは、光学顕微鏡で確認できる斜め方向へ平行に伸びる結晶が、重なり部分をまたいで連続的に繋がっていることである。これは、先に結晶成長した領域が次の照射で熔融し結晶成長する際に、最初の結晶が種となって横方向へ面方位を維持した成長が起こっていることを示唆している。確認のため図 3 内にて四角で囲った部分の結晶面方位を電子線後方散乱回折 (EBSD) 法によって調べたところ、図 3 右図に示す様に (1 1 1) 面の結晶が連続成長していることが分かった (学会発表 3)。

以上の結果は、この成長方法で大面積に渡って面方位制御された結晶を成長できる可能性があることを示しており、本研究では薄膜シリコン面方位制御に関する重要な知見を得ることができた。

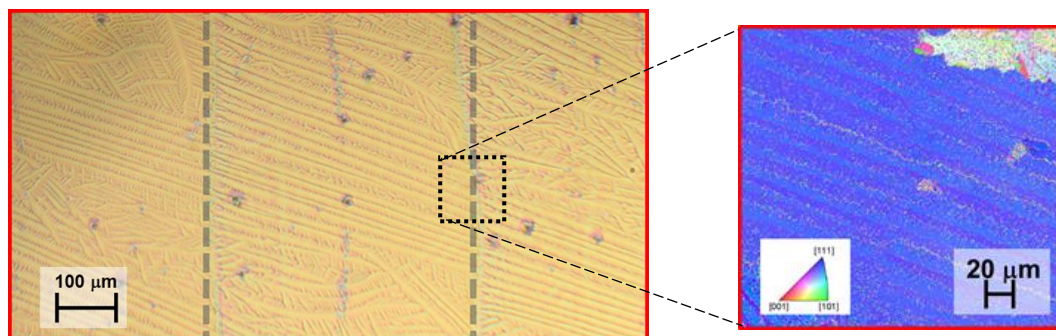


図 3. 回転ステージを用いて超ハイパワー TPJ 照射により結晶化したフレキシブルガラス基板上のシリコンの光学顕微鏡像 (左) と結晶成長オーバーラップ部の EBSD による結晶面方位マップ (右).

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 3 件)

1. H. Hanafusa, R. Nakashima, W. Nakano, and S. Higashi, “Extremely high-power-density atmospheric-pressure thermal plasma jet generated by the nitrogen-boosted effect,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, **57** (6S2), (2018) 06JH01-1 - 06JH01-4. DOI:10.7567/JJAP.57.06JH01 (査読有り)
2. R. Nakashima, R. Shin, H. Hanafusa, and S. Higashi, “Generation of ultra high-power thermal plasma jet and its application to crystallization of amorphous silicon films,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, **56** (6S2), (2017) 06HE05-1 - 06HE05-4. DOI: 10.7567/JJAP.56.06HE05 (査読有り)
3. H. Hanafusa, R. Ishimaru, and S. Higashi, “High-temperature and high-speed oxidation of 4H-SiC by atmospheric pressure thermal plasma jet,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, **56** (4), (2017) 040304-1 - 040304-3. DOI:10.7567/JJAP.56.040304 (査読有り)

[学会発表] (計 10 件)

1. S. Higash, H. Harada, and T. Nakatani, “Melting and Crystallization of Amorphous Germanium Films on Insulating Substrate By Atmospheric Pressure Micro-Thermal-Plasma-Jet,” *2018 ECS and SMEQ Joint Int. Meeting (Cancun, Mexico, Sept. 30 - Oct. 4, 2018)*, #1064.
2. **[Invited]** Y. Mizukawa, H. Hanafusa, and S. Higashi, “Analysis of a Molten Region on Amorphous Silicon Film By High-Speed Camera and Contactless Temperature Measurement during Atmospheric Pressure Thermal Plasma Jet Annealing,” *2018 ECS and SMEQ Joint Int. Meeting (Cancun, Mexico, Sept. 30 - Oct. 4, 2018)*, #1196.
3. W. Nakano, H. Hanafusa, S. Higashi, “Ultra-High-Speed Crystallization of Amorphous Silicon

- Films on Flexible Glass Substrate by Thermal-PlasmaJet Irradiation Using Cylindrical Rotation Stage,” *2018 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2018)*, (Tokyo, Japan, Sept. 9-13, 2018). N-8-04.
4. **[Invited]** H. Hanafusa, S. Higashi, “Activation of High-temperature-implanted Phosphorus Atoms in 4H-SiC by Atmospheric Pressure Thermal Plasma Jet Annealing,” *Ext. Abs. 2018 18<sup>th</sup> Int. Workshop Junction Tech. (IWJT-2018)*, (Shanghai, China, Mar. 8-9, 2018), pp. 24-27.
  5. **[Invited]** S. Higashi, “Nitrogen-boosted Atmospheric Pressure Thermal-Plasma-Jet Generation and Its Application to Crystallization of Amorphous Silicon Films on Flexible Glass,” *2018 Int. Thin-Film Transistor Conf. (ITC2018)*, (Guangzhou, China, Feb. 28 – Mar. 2, 2018), pp. 46.
  6. H. Hanafusa, W. Nakano, R. Nakashima and S. Higashi, “Extremely High-power-density Atmospheric Pressure Thermal-Plasma-Jet Generated by Nitrogen-boost Effect,” *Proc. Int. Symp. Dry Process (DPS2017)*, (Tokyo, Japan, Nov. 16-17, 2017). p. 33.
  7. T. Hieda, H. Hanafusa, S. Higashi, “Investigation on Crack suppression by Thermal-Plasma-Jet Crystallization of Amorphous Silicon Films on Flexible Glass Substrate,” *231<sup>st</sup> Electrochem. Soc. (ECS) Meeting (New Orleans, LA, USA, May. 28 - Jun.1, 2017)*. #1019.
  8. T. Hieda, H. Hanafusa, and S. Higashi, “Investigation on Crack Suppression Mechanism in Micro-Thermal-Plasma-Jet Crystallization of Amorphous Silicon Films on Flexible Glass Substrate,” *Ext. Abs. Int. Workshop Nanodevice Technologies 2017 (IWNT2017)*, (Higashi-Hiroshima, Japan, Mar. 2, 2017), p. 50.
  9. T. Hieda, R. Shin, H. Hanafusa, S. Higashi, “Micro-thermal-plasma-jet Crystallization of Amorphous Silicon Films on Flexible Glass Substrate,” *34<sup>th</sup> Symposium on Plasma Processing (SPP34) / The 29<sup>th</sup> Symposium on Plasma Science for Materials (SPSM29)*, (Hokkaido, Japan, Jan. 16-18, 2017), 17pB5.
  10. R. Nakashima, R. Shin, H. Hanafusa and S. Higashi, “Generation of Ultra High Power Thermal Plasma Jet (Super TPJ) and Its Application to Crystallization of Amorphous Silicon Films,” *Proc. Int. Symp. Dry Process (DPS2016)*, (Sapporo, Japan, Nov. 21-22, 2016), p. 33.

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年：  
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年：  
国内外の別：

[その他]  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。