

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 5 日現在

機関番号：14603	
研究種目：若手研究(B)	
研究期間：2011～2012	
課題番号：23760284	
研究課題名（和文）	積層構造レーザーアニールによる非晶質基板上単結晶ゲルマニウム薄膜の低温形成
研究課題名（英文）	Low Temperature Formation of Single Crystal Germanium Thin Film by Laser Annealing for Laminated Structure
研究代表者	
	堀田 昌宏 (MASAHIRO HORITA)
	奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・助教
	研究者番号：50549988

研究成果の概要（和文）：非晶質基板上への単結晶 Ge 低温形成を目指して、積層構造 Ge//Si のグリーンレーザーアニール (GLA) に取り組んだ。この構造を用いることによって、Ge のみならず Si も結晶化が可能であることが分かった。また、CO₂ レーザーを用いて、積層構造 Si//Si を複数層同時に結晶化させることについても検討を行った。GLA による結晶化と比較すると、形成された多結晶の粒径は約 2 倍（ $\sim 2 \mu\text{m}$ ）と大きく、また、2 層同時大粒径結晶化に成功した。

研究成果の概要（英文）：In order to obtain single crystal germanium (Ge) on amorphous substrates, green laser annealing (GLA) for the Ge//Si laminated structure was investigated. We found that the lower Si layer can be crystallized as well as the upper Ge layer. In addition, we also examined CO₂ infrared laser annealing for the Si//Si laminated structure. The size of poly-Si grains formed by CO₂ laser annealing was approximately twice as large ($\sim 2 \mu\text{m}$) as that by GLA. The upper and lower Si layers were simultaneously crystallized with large grains.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学，電子・電気材料工学

キーワード：薄膜トランジスタ，ゲルマニウム，シリコン，レーザーアニール，結晶化

1. 研究開始当初の背景

液晶ディスプレイなどの薄型ディスプレイは、ガラスパネル上に形成された薄膜トランジスタ (TFT) という半導体デバイスを用いて、画素表示が行なわれている。ガラス基板上に作製される TFT は、プロセス温度に制限があり、IC デバイスと比較するとチャネル移動度が低く、用途はディスプレイの画素駆動にとどまっている。ディスプレイの高性能・多機能化のためには、TFT チャネル移動度の向上とプロセスの低温化が必須である。移動度を向上することで、これまで IC でしか実現されていなかった、高速演算・記憶デバイス、無線通信デバイスをガラスパ

ネル上に配置した多機能システムオンパネルが可能となり、さらに、TFT プロセス温度を低減することで、プラスチック樹脂等を基板としたフレキシブル多機能システムオンパネルが可能となる。

現在の薄型ディスプレイでは、アモルファスシリコン (a-Si, 移動度: $1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$) を用いた TFT が主流である。また、次世代のディスプレイ用駆動デバイスとして、アモルファスインジウムガリウム亜鉛酸化物 (a-IGZO, 移動度 $20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$) を用いた TFT の研究が盛んに行なわれている。しかし、ガラスやプラスチックなどの非晶質基板上への高速演算・記憶デバイスや無線通信デバイスを形成

し、多機能システムオンパネルを実現するためには、 $1000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度の移動度が必要であり、a-Si や a-IGZO では、全く不十分である。また、これらのデバイスを実現する上で、CMOS 構造が必要となるが、a-Si や a-IGZO では、p 型の実現が困難という問題がある。

ガラス基板上に形成可能で、高い移動度を有する材料として、低温多結晶シリコン (poly-Si) がある。低温 poly-Si は、一般的にレーザーアニールによって形成される。レーザーアニールは、レーザーによって、a-Si を局所加熱溶解させた後、結晶化させる方法であり、基板温度の上昇を抑制することから、ガラス基板が使用可能である。レーザーアニールによる低温 poly-Si では、電子・正孔ともに $100 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ を超える移動度が実現されているが、システムオンパネルの実現には、なお不十分である。低温 poly-Si 薄膜には、結晶粒界が存在し、これがバルク Si (移動度: $1500/450 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ (電子/正孔)) に対して移動度が低下する原因の一つとなっている。また、Si の融点が 1400°C と高く、レーザーアニールを用いても、プラスチック樹脂を基板とするのは困難である。より高移動度の TFT を実現するためには、(i) バルク移動度が大きい材料を用いる、(ii) 結晶粒界を低減してバルク移動度に近づける、ことが必要であり、本研究では、これらを実現する材料として、ゲルマニウム (Ge) に着目する。Ge は、バルクにおいて電子移動度 $3900 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、正孔移動度 $1900 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ をもつ半導体である。Ge の場合も、Si の場合と同様に、レーザーアニールによって結晶化を行なうことが可能であるが、結晶は多結晶となり粒界を含むことから、移動度の低下が予測される。しかし、2009 年に宮尾らによって、ガラス基板上において、幅 $2 \mu\text{m}$ 、長さ $400 \mu\text{m}$ の、粒界が存在しない単結晶 Ge が形成可能であることが報告された。この報告は、赤外線ランプ加熱による 1000°C 、1 秒間のアニールであり、耐熱性が低いフレキシブル基板への適応は困難であるが、非結晶基板上への単結晶 Ge 形成の可能性を示すものである。申請者は、これにレーザーアニールを適用することで、基板温度の上昇を抑え、フレキシブル基板上への単結晶 Ge 形成することを考えた。

2. 研究の目的

本研究では、レーザーアニールによって、非晶質基板上で a-Ge の結晶化を行い、単結晶 Ge を実現することを目指す。赤外線ランプアニールを一般的なレーザーアニールに変更しただけでは、単結晶 Ge の実現は困難と考え、本研究では、積層構造レーザーアニールという独自手法を用いて、単結晶 Ge

の実現を目指した。さらに、poly-Si TFT を超える移動度を有する単結晶 Ge TFT の実現を目標として、単結晶 Ge を用いたデバイスの試作を行い、単結晶 Ge TFT を動作させることを目指す予定であった。しかしながら、単結晶 Ge の実現は、課題が多く、また、他のレーザーを用いた手法も新たに提案することが可能になったことから、本研究では、複数のレーザーアニール手法検討により、単結晶 Ge を実現することに専念した。

3. 研究の方法

本研究では、図 1 に示すような、a-Ge/SiO₂/a-Si 構造を形成し、a-Ge 薄膜を線状に加工したのに対して、レーザーアニールを行うことを検討する。あらかじめ結晶化した poly-Si と a-Ge の一端を接触させ、赤外線加熱によってアニールを行うことで、SiGe ミキシングを発生させ、接触部から一方向に結晶化させる。この Ge 線状薄膜に対して、レーザーアニールで結晶化を行うことを考えた場合、冷却に要する時間が短すぎるという問題がある。レーザーアニールは、Si や Ge 薄膜を局所的に加熱する方法であり、熔融から結晶化までの時間は、100 nsec のオーダーであり、赤外線ランプ加熱 ($100 \mu\text{sec}$ オーダー) と比較すると極めて短時間である。このため、Ge 線状薄膜の結晶化を行なったとしても、熔融部分でランダムに結晶核が発生し、多くの粒界を含む多結晶体になると考えられる。ここで、本研究では、この冷却時間を長くする方法として、当研究グループ独自の手法であるグリーンレーザーによる a-Si 積層構造の同時結晶化に着目した。これは、a-Si (50 nm) に対して約 40% の透過率を持つグリーンレーザー (波長: 532 nm) を積層構造に照射することで、上層と下層を同時に加熱し結晶化させる手法である。これは、下層 poly-Si 膜が熱浴としてはたらき、上層 poly-Si 膜の熔融時間が長くなることによるものである。本研究では

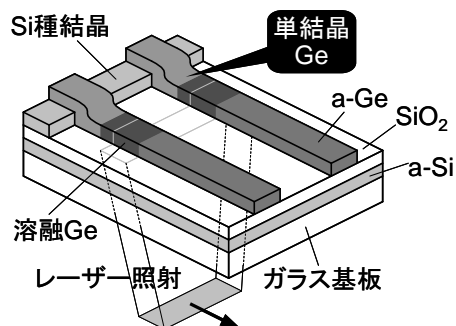


図 1: a-Ge/SiO₂/a-Si/SiO₂ 積層構造のグリーンレーザーアニール

Ge 線状薄膜のアニールにおいて、この積層構造を応用することで、Ge の冷却時間を長くすることで Ge の結晶成長を促進することを試みる。

また、当初の予定に加えて、CO₂ レーザーを用いたアニール手法についても検討する。CO₂ レーザーは、波長 10 μm を有しており、Si や Ge に対して完全に透過するのに対して、SiO₂ に対しては、格子振動モードに応じた吸収があり、Si や Ge、SiO₂ 薄膜の積層構造において、SiO₂ のみを選択的に加熱することが可能である。SiO₂ に対する侵入長が約 40 μm であることから、図 2 に示すように、積層構造を均一に加熱することが可能であり、また、グリーンレーザーによる加熱と比較すると、蓄熱時間は長いと予測される。本研究では、SiO₂/a-Ge/SiO₂/a-Ge/SiO₂ 積層構造の結晶化を目標として、まず SiO₂/a-Si/SiO₂/a-Si/SiO₂ 構造に対する結晶化に取り組んだ。

本研究を進めるにあたって、まず a-Ge 堆積装置の準備を行った。Ge は、固体ソースを K セルによって加熱蒸発させ、対面に設置した基板へ堆積させる、分子線蒸着法で行った。既存の真空堆積装置に対して、本研究補助金にて購入したエフジョーンセルを取り付け、基板温度：室温~300°C、真空度：~10⁻⁶ Pa において高純度 Ge を堆積できる装置を立ち上げた。

次に、この堆積装置によって堆積した a-Ge や a-Ge/SiO₂/Si/SiO₂ に対して、グリーンレーザーを用いた結晶化について検討を行った。また、積層構造に対する CO₂ レーザーアニールでは、化学気相堆積法によって堆積した、SiO₂/Si/SiO₂/Si/SiO₂ 積層構造に対して、CO₂ レーザー照射を行い、Si の同時結晶化を試みた。アニールを行った Si や Ge 薄膜は、X 線回折やラマン分光法によって評価を行った。

4. 研究成果

Ge/SiO₂/Si/SiO₂ 積層構造に対してグリーンレーザーアニールを行い、上層 Ge 薄膜に対して X 線回折測定で、下層 Si に対してラマン分光測定で評価を行った結果を図 3 に示す。上層 Ge に対して、単結晶を実現することはできていないが、多結晶 Ge が形成できていることは確認できた。また、下層 Si については、これまで当研究グループで行なってきた Si/SiO₂/Si/SiO₂ 積層構造アニールと同様に、結晶化が生じていることが分かった。Ge に関して、今後、レーザーアニールの条件や Ge パターンの形状変化が結晶化におよぼす効果の知見を得るとともに、単結晶の実現を目指す予定である。また、下層 Si に関しても、結晶化が実現されていることから、単なる熱浴としての機能ではなく、デバイス構造の一部として利用可能であり、上層、下層複合デバイス応用を検討していく。

また、SiO₂/Si/SiO₂/Si/SiO₂ 積層構造に対

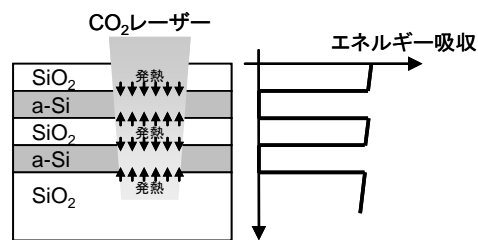


図 2: CO₂ レーザーアニールによる積層構造 a-Si 薄膜の同時結晶化

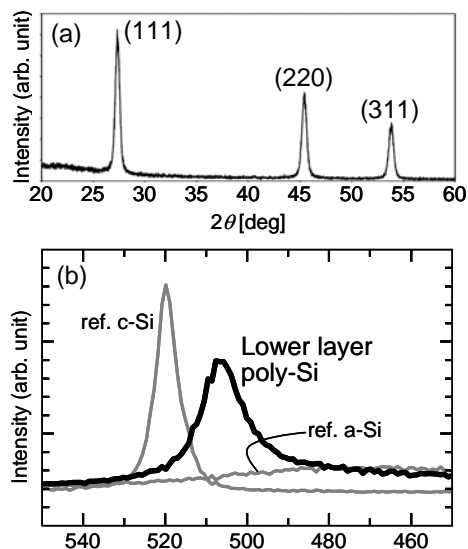


図 3: グリーンレーザーアニールによる Ge/SiO₂/Si/SiO₂ 積層構造の結晶化; (a) 上層 Ge 層 X 線回折, (b) 下層 Si 層のラマンスペクトル。

して、CO₂ レーザーアニールを行い、結晶粒の評価を行った結果を図 4 に示す。これまで、当研究グループで行なってきたグリーンレーザーアニールでは、上層にて大粒径が実現できる一方で、下層に対しては、10 nm オーダーの微結晶しか実現できていなかった。これに対して、本研究で行った、CO₂ レーザーアニールでは、上層、下層ともに 2 μm 程度の粒径を有する大粒径 poly-Si を形成することに成功した。複数層にわたって大粒径多結晶が実現できることは、極めて有効であると考えている。

単結晶 Ge の実現および単結晶 Ge を用いた TFT の実現には、至らなかったが、当初の研究計画に加えて行った、積層構造半導体薄膜の CO₂ レーザーアニールにおいて、大粒径結晶の形成に成功するなどの結果が得られ、一定の成果が得られたと考える。

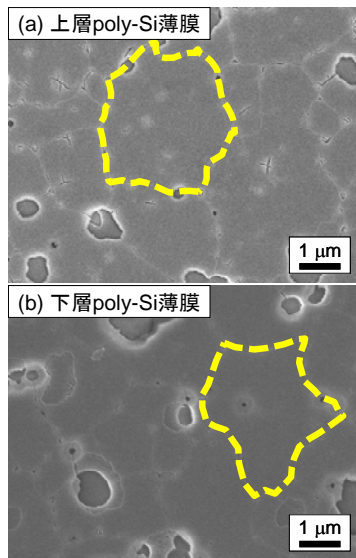


図 4: CO₂ レーザーアニールによる積層構造 SiO₂/Si/SiO₂/Si/SiO₂ の大粒径同時結晶化; (a)上層 poly-Si 薄膜, (b)下層 poly-Si 薄膜.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

1. K. Yamasaki, E. Machida, M. Horita, Y. Ishikawa, and Y. Uraoka; “Thin Film Devices Fabricated on Double-Layered Polycrystalline Silicon Films Formed by Green Laser Annealing”, Japanese Journal of Applied Physics, 査読あり, (2012), **51**, 03CA03, 10. 1143/JJAP. 51. 03C A03

[学会発表] (計 7 件)

1. 山崎浩司, “三次元構造デバイス応用に向けた CO₂ レーザーアニールによる積層多結晶シリコン薄膜の形成”, 第 60 回春季応用物理学関連連合講演会, 2013/03/28, 神奈川工科大学.
2. 山崎浩司, “CO₂ レーザーアニールによる多結晶シリコン薄膜の形成”, 薄膜材料デバイス研究会第 9 回研究集会, 2012/11/03, なら 100 年会館.
3. M. Horita, “Super Low Temperature Fabrication of Thin Film Transistors with Polycrystalline Si and Oxide Semiconductor Materials”, The 12th International Meeting on Information Display (Invited), 2012/08/29, Daegu, Korea.
4. K. Yamasaki, “Thin Film Devices

Fabricated on Double-Layered Polycrystalline Silicon Films Formed by Green Laser Annealing”, 18th International Workshop on Active-Matrix Flatpanel Displays and Devices, 2011/07/12, Kyoto.

5. K. Yamasaki, “Thin Film Transistors and Photo Diodes Fabricated on Double-Layered Polycrystalline Silicon Films Formed by Green Laser Annealing”, 2011 International Meeting for Future of Electron Devices, Kansai, 2011/05/20, Osaka.
6. 山崎浩司, “三次元デバイス応用に向けたグリーンレーザーアニールによる積層構造多結晶シリコン薄膜の同時結晶化技術”, 第 72 回秋季応用物理学関連連合講演会, 2011/09/01, 山形大学.
7. 堀田昌宏, “グリーンレーザーによる積層構造シリコン薄膜の同時結晶化と薄膜デバイスへの応用”, 電子情報通信学会シリコン材料・デバイス研究会, 2011/07/04, 名古屋大学.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

堀田 昌宏 (MASAHIRO HORITA)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・助教

研究者番号: 50549988