

铝诱导非晶硅薄膜的场致低温快速晶化 及其结构表征^{*}

陈一匡 林揆训[†] 罗 志 梁锐生 周甫方

(汕头大学物理系, 汕头 515063)

(2003 年 3 月 19 日收到 2003 年 5 月 4 日收到修改稿)

铝诱导非晶硅薄膜晶化可以降低退火温度、缩短退火时间,是制备多晶硅薄膜的一种重要方法.在此基础上,通过在退火过程中加入电场加速了界面处硅、铝原子间的互扩散,实现了非晶硅薄膜的快速低温晶化.实验结果表明,外加电场,退火温度为 400℃,退火时间为 60min 时,薄膜的晶化率大于 60%;退火温度为 450℃退火时间为 30min 时,薄膜已经呈现明显的晶化现象.退火温度为 500℃退火时间为 15min 时,薄膜的 x 射线多晶峰强度与非晶峰强度之比为未加电场的 3—4 倍.

关键词:非晶硅薄膜,多晶硅薄膜,外加电场

PACC:6470K, 6822, 8130

1. 引 言

与非晶硅薄膜相比,多晶硅薄膜具有较高的电迁移率和稳定的光电性能而备受关注,在薄膜晶体管、微电子集成电路^[1]以及薄膜太阳能电池^[2]等方面都有广泛应用.多晶硅薄膜的制备方法很多,在相关文献中已经有了详细的报道.与其他制备方法相比,铝诱导非晶硅薄膜低温快速晶化是制备多晶硅薄膜的有效方法^[3-5].我们曾报道了在铝诱导下的非晶硅薄膜在 500℃温度下退火 10min,开始呈现晶化现象,当退火温度为 550℃时,大部分(约占 80%)的非晶硅晶化为多晶硅,退火温度为 600℃时,几乎所有的非晶硅都转化为多晶硅^[6].对于多晶硅薄膜的大规模制备,降低退火温度和缩短退火时间是降低成本的关键问题. Jang^[7]在其文章中报道了镍诱导非晶硅薄膜的场致快速晶化,在电场(80Vcm⁻¹)作用下,退火温度为 500℃时,样品的退火时间由原来的 25h 缩短为 10min.但是,对于制备成本更低的铝诱导非晶硅薄膜的场致晶化还未见相关的报道.

本文报道了铝诱导非晶硅薄膜的场致低温快速晶化.通过比较未加电场和外加电场两种情况下薄

膜结构、形貌和晶化率等性质来分析和讨论电场对非晶硅薄膜晶化的影响.实验结果表明外加电场可以更明显地降低退火温度,缩短退火时间.退火温度为 400℃时,薄膜开始晶化,退火温度为 450℃时,薄膜呈现明显的晶化现象,退火温度为 500℃时,退火 15min,薄膜的多晶硅特征峰强度与非晶峰强度之比为未加电场的 3—4 倍.

2. 非晶硅薄膜在电场作用下的晶化实验

通过热蒸发法在玻璃衬底上沉积厚度为 0.8μm 的铝膜,再用纯硅烷射频辉光放电以 1nms⁻¹的速率覆盖上厚度为 1.2μm 的非晶硅薄膜,反应室中硅烷气体的压强和流量分别为 50Pa 和 30cm³/min,射频(13.56MHz)放电的功率流通量为 100mW/cm²,衬底温度为 250℃.将所制备的样品置于管式加热炉的石英管中,以 500ml/min 的速率通入氩保护气体,分别在 400℃,450℃,500℃和 550℃的温度下退火,退火时间分别为 5min,10min,15min,30min 和 60min.在整个退火过程中通过两个平行导电铜片给样品施加一个 20V/cm 的电场,电场方向与薄膜表面垂直.达

^{*} 国家重点基础研究发展规划项目(批准号:G2000028208)资助的课题.

[†] E-mail: xylin@stu.edu.cn

到所要求的退火时间后立即将石英管拉出加热炉外并加大氩气流量到 800ml/min,使样品迅速降温到 100℃ 以下.石英管中温度从室温升到所需退火温度约 3min,从退火温度降低到室温需 2min 左右.

3. 薄膜的形貌、物相和微结构分析

用扫描电子显微镜、x 射线衍射仪和拉曼谱仪分别测试了样品的表面形貌、x 射线衍射和拉曼谱,通过分析薄膜的形貌、微结构和物相^[8-12],来研究电场对薄膜晶化的影响.

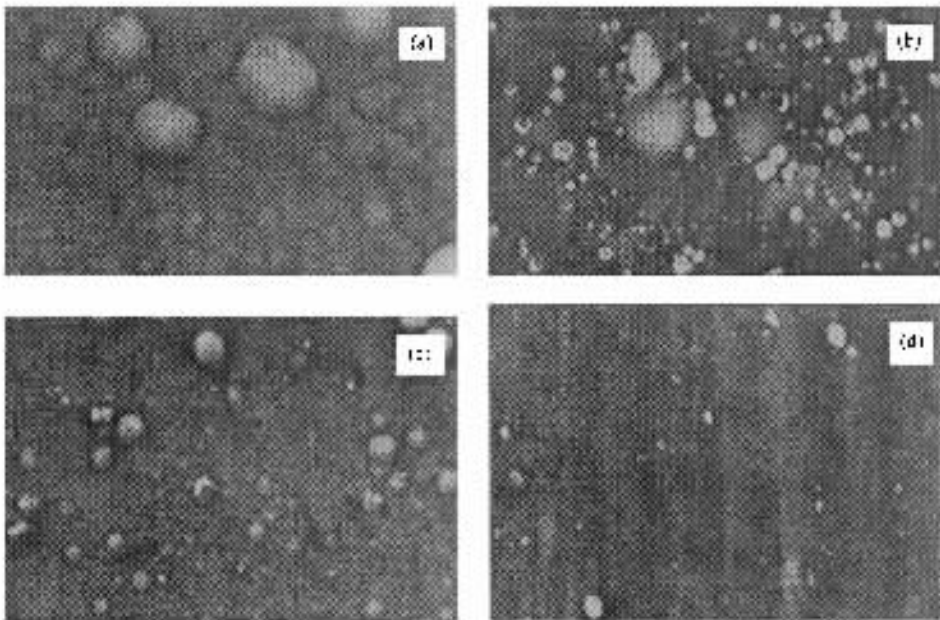


图 1 扫描电子显微镜形貌图 (a)和(b)分别是样品在 400℃外加电场和未加电场两种情况下退火 30min 的表面形貌图;(c)和(d)分别是样品在 500℃外加电场和未加电场两种情况下退火 15min 的表面形貌图

到微小的铝颗粒的小白点.由于样品的制备条件和测试参数完全相同,惟一的区别是在退火过程中是否加入电场.显然,薄膜表面形貌的不同变化是电场所引起的.

3.2. x 射线衍射分析

用 Shimadzu XD-610 的 x 射线衍射仪测试分析样品的物相,测试条件为靶高压 30kV,靶电流 20mA,量程 2keps.图 2(a)是未退火样品的 x 射线衍射图,上面只有非晶硅鼓包和晶面距 $d = 0.233\text{nm}$ 的 Al(111) 的衍射峰.图 2(b),(c) 分别是样品在 450℃外加电场和未加电场两种情况下退火 30min

3.1. 扫描电子显微镜的表面形貌分析

图 1(a),(b)分别为样品在 400℃外加电场和未加电场两种情况下退火 30min 的扫描电子显微镜表面形貌图.从图 1(a)可以看出,在白色的铝颗粒周围布满了灰色的多晶硅颗粒,而图 1(b)只能看到铝的白色颗粒,且直径普遍小于图 1(a)中的铝颗粒.图 1(c),(d)分别是样品在 500℃外加电场和未加电场两种情况下退火 15min 的扫描电子显微镜表面形貌图,从图 1(c)可以清楚地看到紧密排列的多晶硅颗粒,还可以看到铝的白色颗粒,而图 1(d)只能看

的 x 射线衍射图.从中可以看到外加电场的样品的 x 射线衍射图中出现了 Si(111),Si(220)和 Si(311) 的衍射峰,而未加电场的样品的 x 射线衍射图中只有 Al(111)和 Al(200)的衍射峰.而且图 2(b)中 $d = 0.233\text{nm}$ 和 $d = 0.203\text{nm}$ 的 Al(111)和 Al(200)的衍射峰总的强度比图 2(c)中 Al 的衍射峰总的强度高.图 2(d),(e) 分别是样品在 500℃外加电场和未加电场两种情况下退火 15min 的 x 射线衍射图.从图 2(d)可以看到 $d = 0.314\text{nm}$ 的 Si(111) 的衍射峰峰高为图 2(e)中同样位置的 Si(111) 的衍射峰的 3 倍多,且图 2(d)的非晶硅鼓包低于图 2(e)的非晶硅鼓包;从图 2(d)还可以明显看到 Si(220)和 Si(311) 的衍射

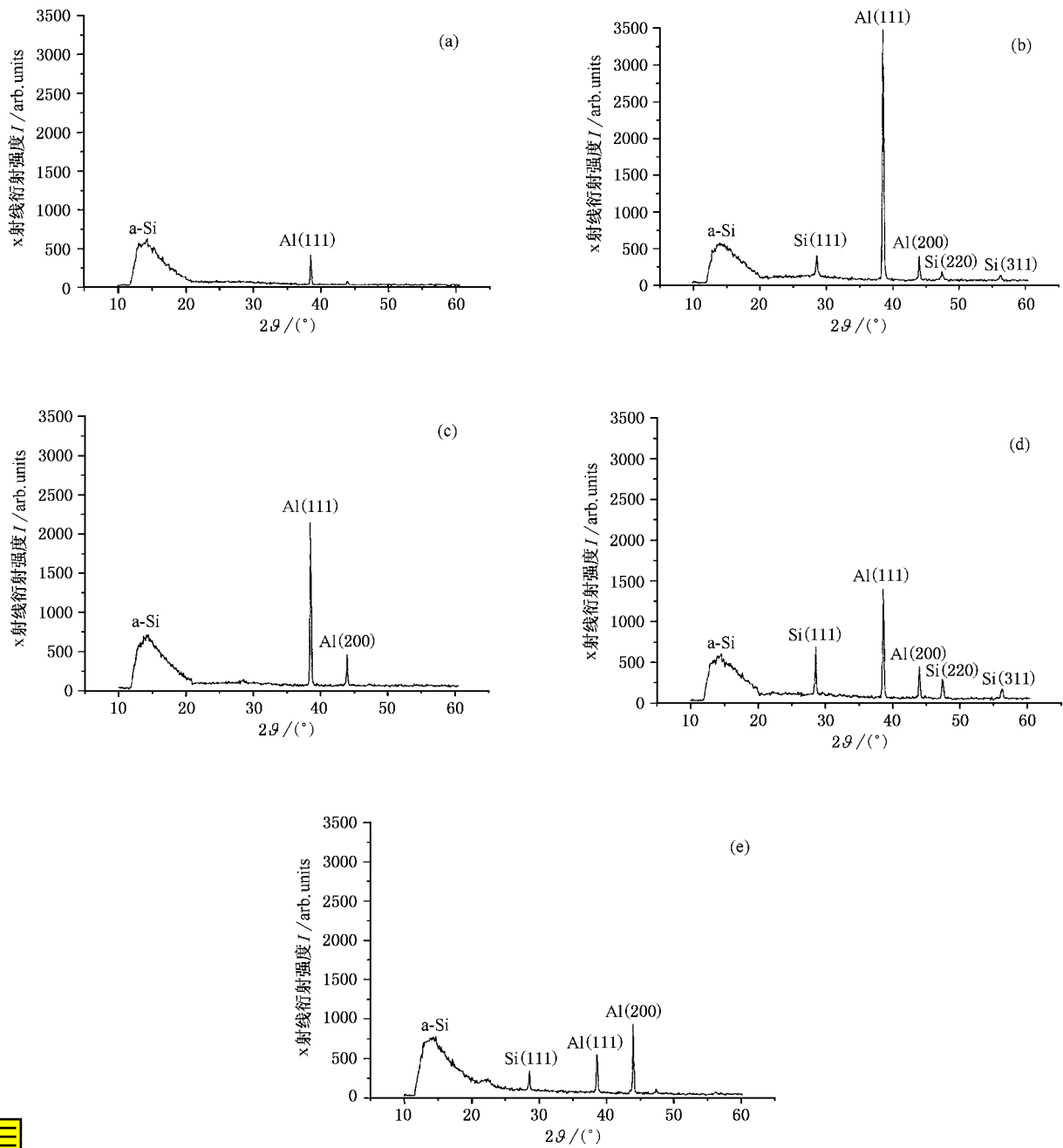


图 2 x 射线衍射图 (a) 为未退火的样品 ;(b) 和 (c) 分别为 450℃ 外加电场和未加电场两种情况下退火 30min 的样品 ;(d) 和 (e) 分别为 500℃ 外加电场和未加电场两种情况下退火 15min 的样品

峰,而在图 2(e) 中未加电场样品的这些衍射峰却非常微弱.图 2(e) 中 Al(111) 的衍射峰由于择优取向的原因低于 Al(200) 的衍射峰.

对上述 x 射线衍射的分析表明,未加电场情况下,样品在 450℃ 下退火 30min 仍未开始晶化,温度升高到 500℃ 退火 15min,铝膜中的部分铝原子开始向非晶硅薄膜扩散,非晶硅开始向多晶硅转变.在添加了电场之后,加速了硅、铝原子的互扩散,从而缩短了非晶硅向多晶硅转变的时间,样品在 450℃ 下

退火 30min 就已经呈现了明显的晶化现象.

3.3. 拉曼谱分析

用拉曼谱来分析非晶硅薄膜的晶化率^[12,13]. 这里着重分析退火温度为 400℃ 时外加电场样品的晶化率.图 3 中的曲线 a 是在 400℃ 外加电场情况下退火 60min 样品所测量的拉曼谱线,该实验曲线用曲线 b 和曲线 c 拟合.曲线 b 和曲线 c 分别是峰位

在 478cm^{-1} (拉曼位移) 表征非晶硅的高斯曲线和峰位在 520cm^{-1} 表征晶相硅的洛伦兹曲线. 通过计算洛伦兹曲线所包围面积与拉曼谱线所包围面积之比, 可得出样品的晶化率大于 60%, 远高于相同温度未加电场情况下退火时间长达 3h 的晶化率^[3].

未加电场情况下, 铝诱导的非晶硅薄膜低温快速晶化的机理在相关文献已作了较详细的分析^[14].

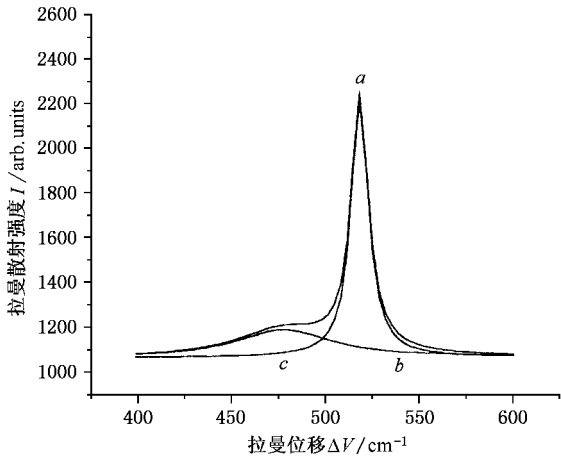


图 3 拉曼散射谱(曲线 *a* 是在电场作用下 400℃退火 60min 样品所测量的拉曼散射谱线, 曲线 *a* 拟合为表征非晶硅组分的高斯曲线 *b* 和晶相硅组分的洛伦兹曲线 *c*)

上述对薄膜微细结构的测试和分析结果表明, 外加电场以后, 由于场致引起的感应作用, 加速了界面处硅、铝原子的互扩散, 从而在更低的退火温度、更短的退火时间内实现了非晶硅薄膜向多晶硅薄膜的转变.

4. 结 论

由上述各种测试和分析结果可以得出如下结论:

- 1. 退火温度为 400℃ 时, 在电场作用下薄膜开始晶化, 在 60min 的退火时间内薄膜的晶化率超过 60%, 远高于已有报道的未加电场退火时间却长得多的晶化结果.
- 2. 退火温度为 450℃ 时, 在 30min 的退火时间内, 外加电场的样品已经呈现明显的晶化现象, 而未加电场的样品仍未出现晶化现象.
- 3. 退火温度为 500℃ 退火时间为 15min 时, 外加电场和未加电场的样品都呈现晶化现象, 但外加电场的样品的晶化程度远高于未加电场的样品的晶化程度.

因此, 外加电场是导致铝诱导非晶硅薄膜低温快速晶化, 实现低成本制备优质多晶硅薄膜的有效工艺, 具有广阔的应用前景.

[1] Fortunato G 1997 *Thin Solid Films* **296** 82

[2] Matsuyama T, Tanaka M, Tsuda S, Nakano S and Kuwano Y 1993 *Jpn. J. Appl. Phys.* **32** 3720

[3] Szekeeres A, Gartner M, Vasiliu F, Marinor M and Beshkov G 1998 *J. Non-Cryst. Solids* **227—230** 954

[4] Pivac B, Furic K and Desnica D 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 4383

[5] Nast O and Wenham S R 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 124

[6] Lin K X *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 863 (in Chinese) [林揆训等 2002 物理学报 **51** 863]

[7] Jang J, Oh J Y, Kim S K, Choi Y J, Yoon S Y and Kim C O 1998 *Nature* **395** 481

[8] Lee M, Moon S, Hatano M, Suzuki K and Grigoropoulos C P 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 4994

[9] Yoon S Y, Oh J Y, Kim C O and Jang J 1998 *J. Appl. Phys.* **84** 6463

[10] Wu Y C *et al* 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 102 (in Chinese) [吴玉程等 1999 物理学报 **48** 102]

[11] Gu T S *et al* 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 267 (in Chinese) [古堂生等 1999 物理学报 **48** 267]

[12] Wang Y Q *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2418 (in Chinese) [王永谦等 2001 物理学报 **50** 2418]

[13] Rao R *et al* 2001 *J. Inorganic mater.* **16**(4) 688 (in Chinese) [饶瑞等 2001 无机材料学报 **16**(4) 688]

[14] Nast O and Hartmann A J 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 716

Aluminum-induced rapid crystallization of a-Si films at low temperatures in an electric field and microstructure analyses of the crystallized films^{*}

Chen Yi-Kuang Lin Kui-Xun Luo Zhi Liang Rui-Sheng Zhou Fu-Fang

(*Department of Physics, Shantou University, Shantou 515063, China*)

(Received 19 March 2003 ; revised manuscript received 4 May 2003)

Abstract

Aluminum-induced crystallization of amorphous silicon (a-Si) is a suitable method for preparation of polycrystalline silicon (poly-Si) films. Biasing an electric field, which is perpendicular to the surface of the a-Si films, will accelerate the mutual diffusion of Al atoms and Si atoms in the interface during the aluminum-induced crystallization process and enhance the crystallization of the a-Si films obviously. The experimental results show that under the action of the electric field, more than 60% of a-Si transfer into poly-Si when the a-Si film was annealed at $T_a = 400^\circ\text{C}$ and annealing time $t_a = 60\text{min}$; the a-Si films have obviously crystallized at $T_a = 450^\circ\text{C}$ and $t_a = 30\text{min}$; at $T_a = 500^\circ\text{C}$ and $t_a = 15\text{min}$, the XRD intensity of crystalline silicon (c-Si) components in the films is thrice to fourfold as strong as that in the films without the effect of an electric field.

Keywords : amorphous silicon film, polycrystalline silicon film, electric field

PACC : 6470K, 6822, 8130

^{*} Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. G2000028208).