

二维移相光栅光强分布的计算及在制备有序纳米硅阵列中的应用*

严敏逸 王旦清 马忠元[†] 姚 尧 刘广元 李 伟 黄信凡 陈坤基 徐 骏 徐 岭

(南京大学物理系, 固体微结构物理国家重点实验室, 南京 210093)

(2009 年 7 月 9 日收到; 2009 年 8 月 6 日收到修改稿)

从菲涅耳衍射积分的一般形式出发, 结合二维(2D)移相光栅掩模(PSGM)的具体参数, 通过数值计算得到了作用于样品表面的光强分布. 实验上, 采用激光干涉晶化的方法, 利用周期为 400 nm 的 2D-PSGM 调制 KrF 准分子激光器的脉冲激光束斑的能量分布, 在氢化非晶硅(a-Si:H)薄膜上直接制备了 2D 的有序纳米硅(nc-Si)阵列. 测试结果表明: 2D 的 nc-Si 阵列的周期和 PSGM 的相一致, 晶化区域与理论模拟的结果符合得很好.

关键词: 纳米硅, 激光干涉晶化, 移相光栅, 菲涅耳衍射

PACC: 4230K, 4255G, 7360, 8115H

1. 引言

随着微电子器件集成度的不断提高, 纳米尺度电子器件的制备方法和性能的研究已引起了广泛的关注. 硅作为微电子器件的主要材料, 其低廉的成本和良好的应用前景使得基于纳米硅(nc-Si)材料的纳电子与光电子器件成为了国际上的研究热点之一. 许多研究小组已经开始致力于纳米硅基 LED^[1]、硅基单电子晶体管^[2]和硅基电致发光器件^[3]等的研究. 要想使 nc-Si 器件进入实用领域, 必须采用一种能与硅平面工艺相兼容的定域制备技术, 来得到高密度、尺寸可控的 nc-Si 颗粒. 传统的光刻技术在分辨率上因受到光源波长的限制, 无法制备非常精细的周期性结构. 因此, 许多研究小组提出了模板法^[4]、双\多光束干涉结晶法^[5]以及电子束刻蚀法^[6]等多种新的制备技术.

我们小组曾提出过一种定域激光干涉晶化的方法来制备周期性 nc-Si 阵列^[7,8], 即使用移相光栅掩模(PSGM)调制到达样品表面的激光能量密度, 使得到达氢化非晶硅(a-Si:H)薄膜表面的能量密度呈现周期性分布, 继而使其发生相变得到 nc-Si

阵列. a-Si:H 薄膜上形成 nc-Si 的区域取决于其自身的晶化阈值和到达样品表面的光强分布. 文献[9]中采用平面波展开的方法, 忽略 ± 1 级以外的所有高阶项, 近似地得到了通过一维(1D)PSGM 后到达样品表面的光强分布. 为了结合 a-Si:H 薄膜的晶化阈值来制备更精细的图形化结构, 光强分布要求更精确的描述.

基于上述考虑, 本文从菲涅耳衍射积分的一般形式出发, 计算了光通过二维(2D)浮雕型 PSGM 后的光强分布. 实验上, 我们利用等离子增强化学气相沉积(PECVD)技术制备了厚度为 10 nm 的 a-Si:H 薄膜, 采用周期为 400 nm 的 2D-PSGM 进行激光干涉晶化实验. 实验结果表明: 激光晶化实验后, 得到了周期为 400 nm 的 nc-Si 阵列, 其晶化区域与理论模拟的结果符合得很好.

2. 移相光栅后衍射图样的理论分析

2.1. 菲涅耳衍射分析

菲涅耳近似下的衍射场分布为^[10]

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2006CB932202)、江苏省自然科学基金(BK2007135)和国家高技术研究发展计划(批准号: 2008AA031403)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: zyma@nju.edu.cn

$$U(x,y) = \frac{e^{jkz}}{j\lambda z} \iint_{-\infty}^{\infty} U(\xi,\eta) \exp\left\{j\frac{k}{2z}[(x-\xi)^2 + (y-\eta)^2]\right\} d\xi d\eta, \tag{1}$$

写成卷积的形式

$$U(x,y) = \iint_{-\infty}^{\infty} U(\xi,\eta) h(x-\xi,y-\eta) d\xi d\eta$$
$$= U(\xi,\eta) \otimes h(x,y), \tag{2}$$

卷积核为

$$h(x,y) = \frac{e^{jkz}}{j\lambda z} \exp\left[j\frac{k}{2z}(x^2 + y^2)\right]. \tag{3}$$

对两边进行傅里叶变换(FT),得到

$$\mathcal{F}\{U(x,y)\} = \mathcal{F}\{U(\xi,\eta)\} H(f_x,f_y) \big|_{f_x=x/\lambda z, f_y=y/\lambda z}, \tag{4}$$

其中

$$H(f_x,f_y) = \mathcal{F}\{h(x,y)\}$$
$$= \exp\{-j\pi\lambda z(f_x^2 + f_y^2)\}. \tag{5}$$

最后得到衍射场分布

$$U(x,y) = \mathcal{F}^{-1}\{\mathcal{F}\{U(\xi,\eta)\} H(f_x,f_y)\}. \tag{6}$$

2. 2. 透过率函数的描述

由(6)式可知,为了得到 PSGM 后的衍射场分布 $U(x,y)$,就要先计算透过率函数 $U(\xi,\eta)$. 移相光栅的透过率函数应表示成

$$U(\xi,\eta) = e^{i\varphi(\xi,\eta)}. \tag{7}$$

图 1 是周期为 400 nm 的 2D-PSGM 的 AFM 图像,为了描述它的透过率函数,我们把其截面结构简化成如图 2 所示. 为了得到关于空间坐标的位相函数,在光栅出射面上,取凹槽处的位相 $\varphi_1 = 0$,其他部分的位相为 φ_2 ,则两处的位相差 $\Delta\varphi = \varphi_2 - \varphi_1$.

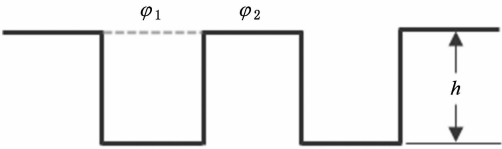


图 2 2D-PSGM 截面的结构示意图

$$\Delta\varphi = (n_2 - n_1) \frac{2\pi h}{\lambda}. \tag{8}$$

代入 $n_2 = 1.5, n_1 = 1.0, h = \lambda = 248 \text{ nm}$ 得 $\Delta\varphi = \pi$, 故 $\varphi_2 = \pi$. 因此,两处对应的透过率函数分别为 $e^{i0} = 1, e^{i\pi} = -1$. 于是,此位相型光栅就被转化为振幅型求解.

为了描述光栅的透过率函数,定义下式:

$$\text{rectComb}(x,a,d,N) = \sum_{n=1}^N \text{rect}\left(\frac{x - (n - 0.5)d}{a}\right), \tag{9}$$

其中, x 为空间坐标, a 为矩孔宽度, d 为周期, N 为周期数,

$$\text{rect}(x) = 0.5[\text{sign}(0.5 - x) + \text{sign}(0.5 + x)]$$

为矩形函数. 于是,二维光栅的透过率函数可以表示成

$$U(\xi,\eta) = 2\text{rectComb}(\xi,a,d,N)$$
$$\times \text{rectComb}(\eta,a,d,N) - 1. \tag{10}$$

根据(6)式,我们通过数值计算求解 $U(x,y)$,并得到了辐照到样品上的光强分布 $I(x,y)$. 各计算参量的选取如下, $\lambda = 248, a = 200, d = 400, z = 100, N = 9$.

2. 3. 计算结果

如图 3 所示,入射光受到光栅的调制后,辐照到样品表面的光强呈强弱相间的 2D 周期性分布. 其周期和 2D-PSGM 的相同,为 400 nm. 每个周期内,只有超过样品晶化阈值强度的那部分区域能够发生相变,从非晶态转变为晶态.

从图 3 中可以看到,单个周期内,光强的最大值 $I_{\max}$ 处于中心位置. 并且,由中心向外,光强沿径向迅速减小. 若 a-Si:H 薄膜的晶化阈值 $I_c < I_{\max}$, 则光强 $I > I_c$ 的区域将发生相变,a-Si:H 薄膜上将会形成周期为 400 nm 的 nc-Si 阵列. 在晶化阈值一定的情况下,当激光的输出功率增大时,光强 $I > I_c$ 的区域扩大,单个周期内晶化的区域也将沿径向扩大. 因此,根据以上的计算结果,我们可以结合激光的输出功率和 a-Si:H 薄膜的晶化阈值来制备尺寸

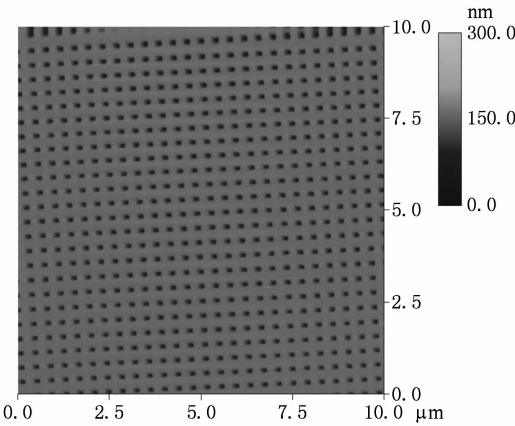


图 1 2D-PSGM 的 AFM 图像,周期为 400 nm

结合 PSGM 的设计参数,位相差又可以表示为

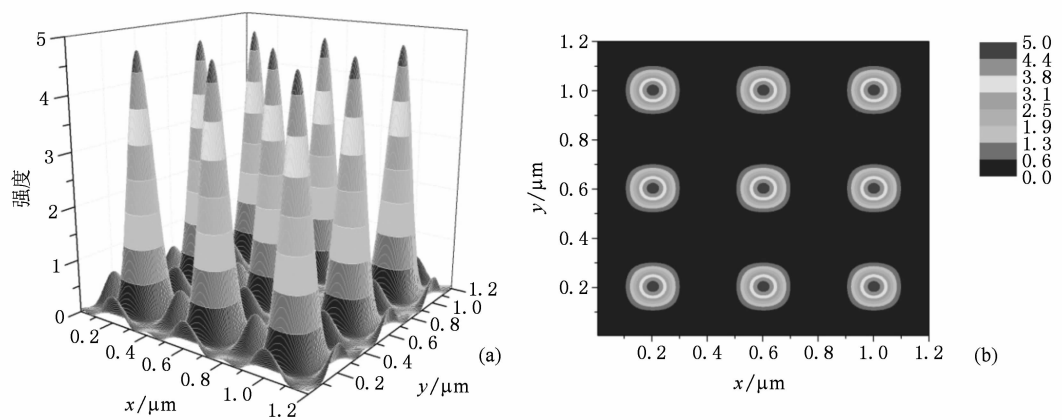


图3 经 2D-PSGM 辐照到样品表面的光强分布 $I(x,y)$ (a) 立体图;(b) 平面图

可控的2D 周期性 nc-Si 阵列.

3. 实 验

3.1. 光栅的制备

运用电子束光刻与反应离子刻蚀相结合的方法,在熔融石英片上制作了周期为 400 nm 的 2D-PSGM. 激光干涉晶化实验中所使用的是波长为 248 nm 的 KrF 准分子激光器,为了使得通过 PSGM 后的位相差为,光栅的刻蚀深度设计为 $h = \frac{\lambda}{2(n-1)} = 248\text{ nm}$, 其中 $n = 1.5$ 为石英片的折射率.

3.2. a-Si:H 薄膜的制备

实验所用的 a-Si:H 单层薄膜由 PECVD 方法制备. 射频源的频率为 13.56 MHz,功率为 20 W. a-Si:H 层淀积时,反应气源为纯硅烷 (SiH_4),用 Ar 气携带,反应气压为 280 mTorr ($1\text{ mTorr} = 1.33322 \times 10^2\text{ Pa}$),衬底温度为 250 ℃,淀积速率约为 0.1 nm/s. 单层 a-Si:H 层厚设计为 10 nm,使用的衬底为 p 型 Si 或石英片.

3.3. 激光诱导定域晶化

实验为单脉冲辐照. 在进行激光干涉结晶实验时,样品置于 x - y 方向可移动的平台,2D-PSGM 放置在样品的表面,实验使用的光路图 4 所示. 晶化过程中,通过改变激光器的输出功率或者控制到达样品表面的束斑面积,可以调节到达样品表面的激光能量密度. 激光束垂直通过 2D-PSGM 时,根据 2.3 节的计算结果,到达样品表面的激光光斑内形成能

量强弱相间的 2D 周期性分布. 如果光强大于 a-Si:H 薄膜的晶化阈值,则 a-Si:H 层被定域晶化,形成与光栅同周期的 nc-Si 阵列.

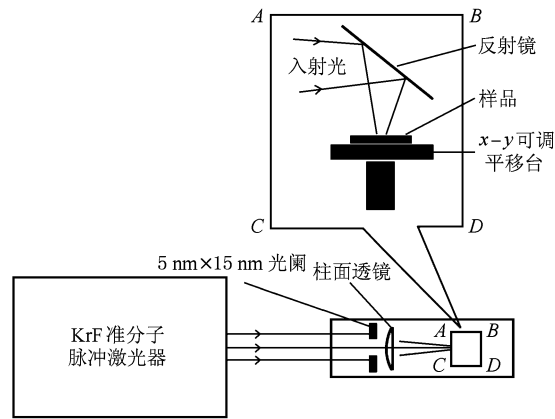


图4 激光干涉晶化实验装置侧面示意图(样品置于 x - y 可调平移台上)

3.4. 对激光辐照后薄膜样品的检测

在激光干涉晶化实验完成以后,我们使用 Nanoscope III 型 AFM 来表征样品的表面形貌. 为了确认 nc-Si 的形成,使用 JEM400 型 TEM、高分辨电子显微镜(HREM)来分析结晶膜的微结构.

4. 结果与讨论

图 5 是 a-Si:H (10 nm)/p-Si 经能量密度分别为 200 mJ/cm² 和 230 mJ/cm² 激光辐照后的 AFM 照片. 从图中可以看到,a-Si:H 薄膜上已经定域地形成了轻微突起的 2D 阵列,周期和 2D-PSGM 的一样,为 400 nm.

为了证实在这些轻微突起的区域中已经形成了 nc-Si, 我们进行了平面 TEM, HREM 分析. 图 6(a) 为 a-Si:H 样品经能量密度为 200 mJ/cm^2 的激光辐照后的平面 TEM 照片, 图 6(b) 为样品点状晶化区域的 HREM 照片, 可以看到清晰的 nc-Si 晶格相.

通过对图 5 中不同激光能量密度辐照后的

AFM 照片分析可知: 随着激光能量密度的提高, nc-Si 晶粒的径向范围扩大, 突起高度增加. 以上实验结果和 2.3 节的计算结果相一致. 在晶化阈值一定的情况下, 当到达样品表面的光强随着入射激光能量密度的增加而增大时, 光强超出薄膜晶化阈值的区域扩大, 发生相变形成 nc-Si 晶粒的范围相应扩大.

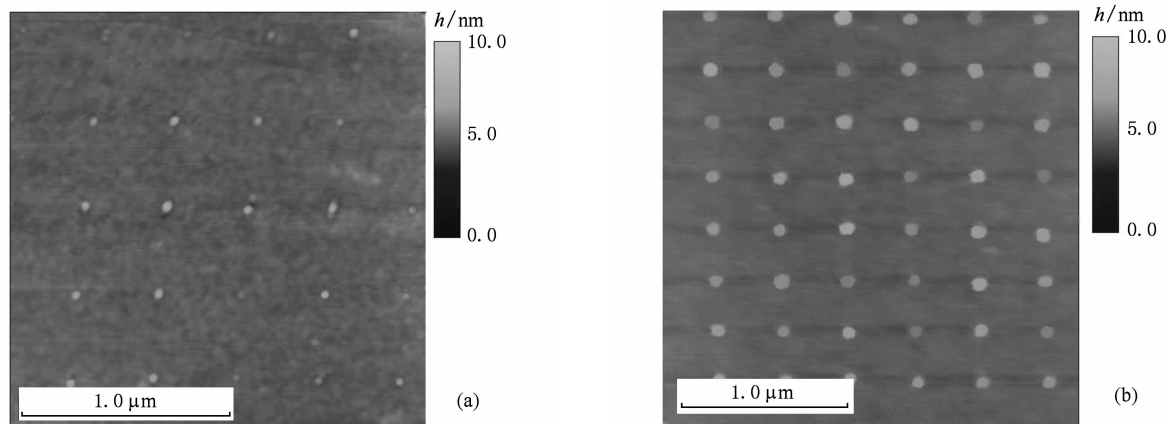


图 5 a-Si:H(10 nm) 样品表面经能量密度为 200 mJ/cm^2 , 230 mJ/cm^2 的激光辐照后的 AFM 照片 (a) 200 mJ/cm^2 ; (b) 230 mJ/cm^2

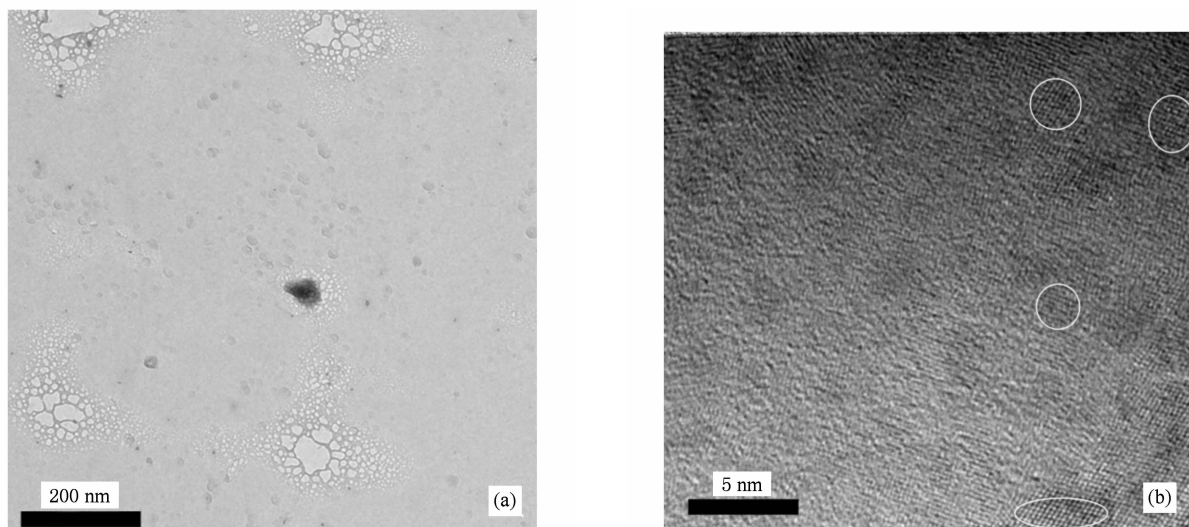


图 6 a-Si:H(10 nm) 样品表面经能量密度为 200 mJ/cm^2 的激光辐照后的 TEM 和 HREM 照片 (a) 平面 TEM 照片; (b) HREM 照片

5. 结 论

本文从菲涅耳衍射积分的一般形式出发, 通过数值计算得到了作用于样品表面的光强分布. 计算结果表明: 作用于样品表面的光强呈强弱相间的 2D 周期性分布, 周期和 2D-PSGM 的相同, 为 400 nm ; 单个周期内, 光强由中心向外沿径向迅速减小. 实

验上, 利用激光干涉晶化的方法, 采用周期为 400 nm 的 2D-PSGM 调制 KrF 准分子激光器的脉冲激光束斑的能量分布, 制备了 2D 有序的 nc-Si 阵列. 测试结果表明: 2D nc-Si 阵列的周期和 2D-PSGM 的相同; 晶化区域与数值模拟的结果符合得很好. 基于以上结果, 可以结合 a-Si:H 薄膜的晶化阈值来制备尺寸可控的图形化 nc-Si 阵列, 这将使激光干涉晶化技术具有更好的应用前景.

- [1] Jorge B, Mariano P, Jose Antonio R, Alfredo M, Montse R, Manel L, Bias G, Laura L, Carlos D 2007 *Physica E* **38** 193
- [2] Kobayashi S, Imaeda M, Matsumoto S 2006 *Mater. Sci. Eng. C* **26** 889
- [3] Yanagisawa S, Sato K, Hirakuri K 2007 *Thin Solid Films* **515** 7990
- [4] Chou S Y, Krauss P R, Zhang W, Guo L, Zhuang L 1997 *J. Vac. Sci. Technol. B* **15** 2897
- [5] Dahlheimer B, Karrer U, Nebel C E, Stutzmanm M 1998 *J. Non-Cryst. Solids* **916** 227
- [6] Heitmann J, Müller F, Zacharias M, Gösele U 2005 *Adv. Mater.* **17** 795
- [7] Zou H C, Qiao F, Wu L C, Huang X F, Han P G, Ma Z Y, Li W, Chen K J 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3646 (in Chinese) [邹和成、乔峰、吴良才、黄信凡、李鑫、韩培高、马忠元、李伟、陈坤基 2005 物理学报 **54** 3646]
- [8] Yao Y, Fang Z H, Zhou J, Li W, Ma Z Y, Xu J, Huang X F, Chen K J, Yasuyuki M, Shunri O 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 4960 (in Chinese) [姚尧、方忠慧、周江、李伟、马忠元、徐骏、黄信凡、陈坤基、宫本恭信、小田俊理 2008 物理学报 **57** 4960]
- [9] Jiang M, Wang M X, Wang M, Chen K J 1999 *Chinese Journal of Lasers* **B 8** 142
- [10] Joseph W G 1996 *Introduction To Fourier Optics* (2 edition) (New York: McGraw-Hill) p67

Light intensity distribution in laser interference crystallization and the fabrication of two-dimensional periodic nanocrystalline silicon array*

Yan Min-Yi Wang Dan-Qing Ma Zhong-Yuan[†] Yao Yao Liu Guang-Yuan

Li Wei Huang Xin-Fan Chen Kun-Ji Xu Jun Xu Ling

(National Laboratory of Solid State Microstructures and Department of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

(Received 9 July 2009; revised manuscript received 6 August 2009)

Abstract

Based on the general form of Fresnel diffraction, light intensity distribution in laser interference crystallization with a phase shifting grating mask (PSGM) was calculated. Two-dimensional (2D) periodic nanocrystalline silicon (nc-Si) array was fabricated by laser interference crystallization combined with 2D-PSGM. The light intensity irradiated on the surface of a-Si:H samples can be modulated by the PSGM with the periodicity of 400 nm. Experimental results demonstrate that the periodicity of 2D nc-Si array is the same as that of the PSGM, the crystalline regions of nc-Si array are consistent with the simulated results.

Keywords: nanocrystalline silicon, laser interference crystallization, phase shifting grating, fresnel diffraction

PACC: 4230K, 4255G, 7360, 8115H

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2006CB932202), the Natural Science Foundation of Jiangsu Province (Grant No. BK2007135) and the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2008AA031403).

[†] Corresponding author. E-mail: zyma@nju.edu.cn