

機関番号：14603

研究種目：基盤研究(A)一般

研究期間：2008～2010

課題番号：20246006

研究課題名(和文)

非二次元シリコン基板のレーザ結晶化とそのデバイス応用

研究課題名(英文)

Laser Crystallization of non two-dimensional Si substrates and their device application

研究代表者

浦岡 行治 (URAOKA YUKIHARU)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・教授

研究者番号：20314536

研究成果の概要(和文)：一次元基板や三次元基板など、非二次元シリコン基板を用いてレーザの結晶化を行い、薄膜トランジスタや薄膜フォトダイオードなどへのデバイス応用を検討した。一次元基板であるファイバー上へのレーザ照射によって、高性能なCMOS回路を作製し、フレキシブルディスプレイの実証を行った。積層したシリコン基板へのレーザ照射によって、高性能な3次元デバイスの性能を確認した。本手法は次世代情報端末の実現に有望である。

研究成果の概要(英文)：We crystallized one dimensional or three dimensional silicon thin film and applied this method to the fabrication of thin film transistors or thin film photo diodes. We demonstrated the effectiveness of this technique by operating high functional devices. This method is promising for the realization of next generation information devices.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	10,100,000	3,030,000	13,130,000
2009年度	8,000,000	2,400,000	10,400,000
2010年度	7,100,000	2,130,000	9,230,000
年度			
年度			
総計	25,200,000	7,560,000	32,760,000

研究分野：光学

科研費の分科・細目：光学基礎・結晶工学

キーワード：レーザ結晶化、薄膜トランジスタ、薄膜フォトダイオード、三次元デバイス、ディスプレイ

1. 研究開始当初の背景

本研究は、次世代の電子デバイスを実現するためのキーテクノロジーであるシリコン薄膜の結晶化技術およびその応用展開に関する研究である。400℃以下の低温で形成される低温ポリシリコン薄膜トランジスタ(Poly-Si TFT)は、安価で大面積ガラス基板の上に形成できるというだけでなく、アモルファスシリコントランジスタに比べ、数百倍の移動度を

実現でき、CMOS回路が形成できることから、画素のスイッチングだけでなく、メモリや演算回路を同一基板上に形成したシステムオンパネルの実現を期待させる有望な技術である。

この低温ポリシリコン技術の中で、重要な技術の一つとして、低温結晶化技術が挙げられる。これまで、最も広く研究されてきたのが、エキシマレーザを用いたレーザ結晶化

技術である。これは、シリコン薄膜に吸収される308nmの波長を持つXeClのエキシマレーザを照射し、熔融固化して結晶化するものである。しかし、粒径が0.3ミクロン程度と小さく、またレーザ出力の不安定性からくる特性ばらつき、ガスのメンテナンスの煩雑さなどから、多くの課題が残る。これらの問題に対して、特に粒径を大きくさせる目的で、国内外で固体レーザを用いた様々な取り組みが行われてきた。しかし、これらは、すべて二次元平面基板形状のシリコン薄膜に関するものであり、従って、予想される成果は薄膜トランジスタの高性能化のみに限定されるものであった。

2. 研究の目的

本研究においては、従来に全くなかった新しい取り組みを展開した。それは、一次元基板及び三次元基板、つまり非二次元基板を用いた結晶化である。これらの取り組みは、学術的な興味と同時に、構造からくるメリットにより、新しいデバイスへの応用展開が期待できるものである。

我々は、レーザ照射時における非平衡状態でのシリコン結晶粒の成長についての議論の中から、結晶性の基板形状依存性について疑問を持った。早速、基礎的な実験を行った結果、十分ではないまでも、その発想に意味があることを裏付ける予備的な実験結果を得た。これらの発想をより具体的に、そして確実にするために、今回の研究を推進した。

3. 研究の方法

一次元基板の結晶化とその形状評価

ここでは、一次元フレキシブル基板を用いて、シリコン薄膜を堆積し、その結晶性評価を行う。一次元基板の結晶化のメカニズムを考察することによって、その有用性を検討した。(1) 約200 μm 程度のフレキシブルなガラスファイバー上に非晶質シリコン薄膜のプラズマCVD法によって堆積し、グリーンレーザを用いて、結晶化した。

(2) セコエッチング法を用いて、粒界をエッチングし、SEM観測によって粒径分布や結晶性を評価した。

(3) レーザの照射条件を変えて、投入エネルギーと結晶性の関係を詳細に調べる。結晶成長シミュレーションによって、そのメカニズムを探った。

三次元基板の結晶化とその形状評価

ガラス基板上に非晶質シリコン膜を積層(二層)化し、グリーンレーザを照射することによって、それぞれのシリコン膜の結晶性を評価した。それぞれのシリコン薄膜における結晶性をレーザの照射エネルギーを変えながら、詳しく評価した。

- (1) ガラス基板上に50nmの非晶質シリコン薄膜をプラズマCVD法によって二層または三層堆積し、グリーンレーザを用いて、結晶化した。
- (2) それぞれの膜をセコエッチング法によって、粒界をエッチングし、SEMやAFMによって粒径分布や結晶性を評価した。
- (3) TEM観測によって、結晶状態の違いや粒界での突起を観測した。
- (4) レーザの照射条件を変えて、投入エネルギーと結晶性の関係を詳細に調べた。
- (5) 結晶成長シミュレーションによって、そのメカニズムを探った。

4. 研究成果

Fig. 1に積層構造と単層構造のシリコン膜におけるグレインサイズのエネルギー密度依存性をしめした。レーザのスキャン方向に対して、平行な方向と垂直な方向のグレインサイズを評価した。積層構造のシリコン膜では、単層に比べ低いエネルギーで大幅な粒成長が観測され、同時に、スキャン方向に対する違方性が低減された。同じ粒径に対し、エネルギー密度は30%程度低減できた。

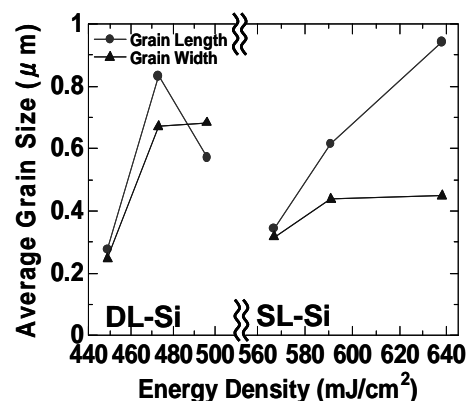


Fig. 1 結晶化粒径のエネルギー密度依存性

Fig.2 に積層構造における下層のシリコン膜のラマンスペクトルを示す。473 と 496 mJ/cm^2 のエネルギー密度で、ピークが観測され、結晶化されていることが示唆された。これは、積層構造シリコン膜において、上層と下層の両方の膜が同時に結晶化されたことを意味するものである。興味深いことは、下層のシリコンの結晶化によって、上層のシリコン膜の粒の増大が促進されていることである。

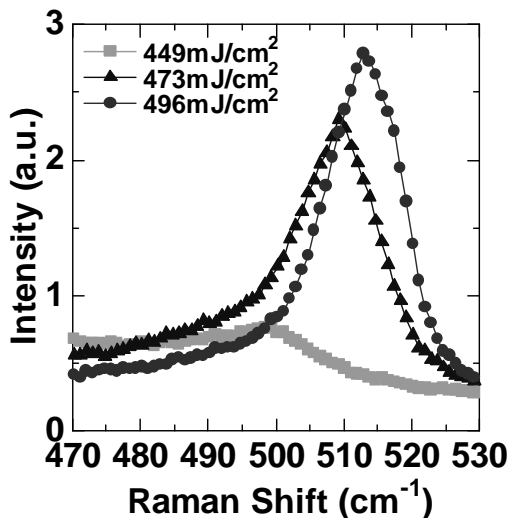


Fig. 2 下層シリコン膜のラマンスペクトル

Fig. 3 に積層構造シリコン膜における上層膜の粒径増加を説明するモデルを提案した。上層シリコン膜を透過したレーザー光が、下層膜を微結晶化するとき、発熱現象が起こり、上層シリコン膜の熱勾配を緩和し、その結果として、上層シリコン膜の熔融時間を延長するのではないかと考える。つまり、下層シリコン膜が、上層シリコン膜の熱浴として働いている。また同時に、透過レーザー光の反射板としても働き、エネルギーの低減につながっているのではないかと考えられる。

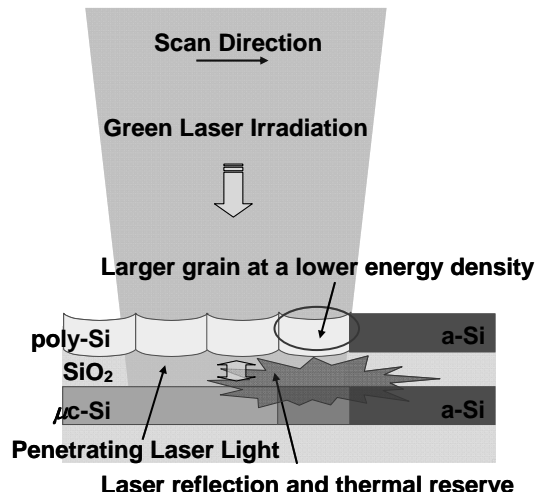
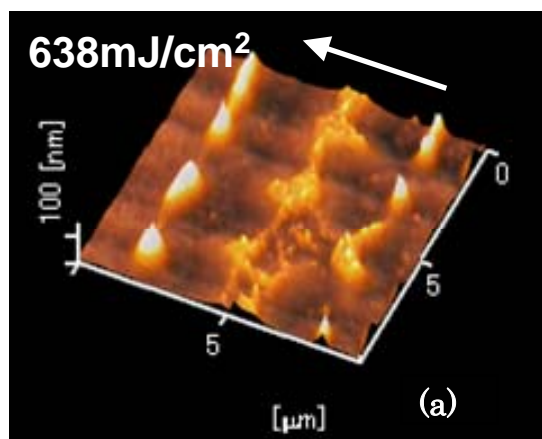


Fig.3 積層構造シリコンの結晶化モデル

Fig. 4 に、単層と積層構造の結晶化膜の典型的なAFM像を示す。単層膜では、レーザーキャンに垂直な方向に 100nm の隆起が $2 \mu\text{m}$ 間隔で観測された。この $2 \mu\text{m}$ は、スキャンピッチに対応するものである。ところが、積層膜では、このような突起は観測されなかった。

Fig. 5 に、単層構造と積層構造シリコン膜のSEM像を示す。結晶粒はスキャン方向に伸びており、 $2 \mu\text{m}$ 間隔でSiの隆起が観測された。一方、積層構造膜では、Siの隆起は消滅し、同時に違方性も消滅した。この違方性の消滅は、下層の熱浴による熔融時間の延長に起因するものと考えられる。



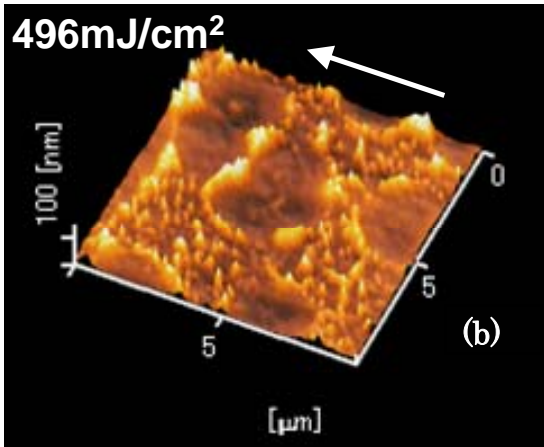


Fig.4 グリーンレーザーによる結晶化膜の AFM 像 (a) 単層膜 (b) 積層膜 (上層)

最後に、これまで説明してきた積層膜、単層膜を用いて作製した薄膜トランジスタの電気特性について、検討した。Fig.6 にそれぞれの膜を膜を用いて形成したTFTの伝達特性を示す。TFTのチャネルをレーザースキャン方向に対し、垂直な方向と平行な方向に作製して、違方性についても評価した。トランジスタのサイズは幅、長さともに $5 \mu\text{m}$ である。単層膜のTFTでは、スキャン方向に平行なチャネルの移動度は $200 \text{cm}^2/\text{Vs}$ が得られたが、垂直方向では、かなりの低下が見られた。一方、積層膜では、スキャン方向に依存せず、水平、垂直ともに、 $400 \text{cm}^2/\text{Vs}$ 近い移動度を得ることができた。それぞれのTFTにおける違方性の有無は、シリコン膜の結晶性に起因しているものと考えられる。

三次元の基板を用いたレーザー照射手法は次世代の情報端末を実現するために有望な手段である。

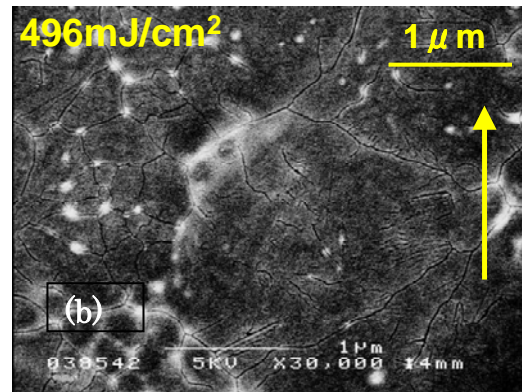
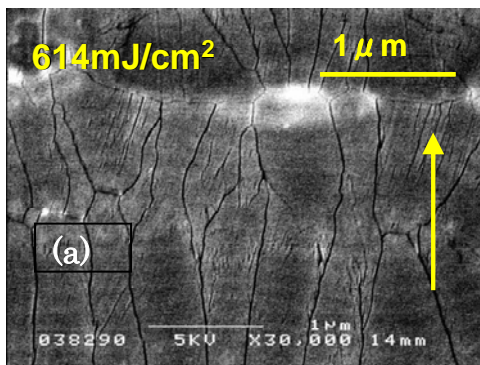


Fig.5 グリーンレーザーによる結晶化膜の SEM 像 (a) 単層膜 (b) 積層膜 (上層)

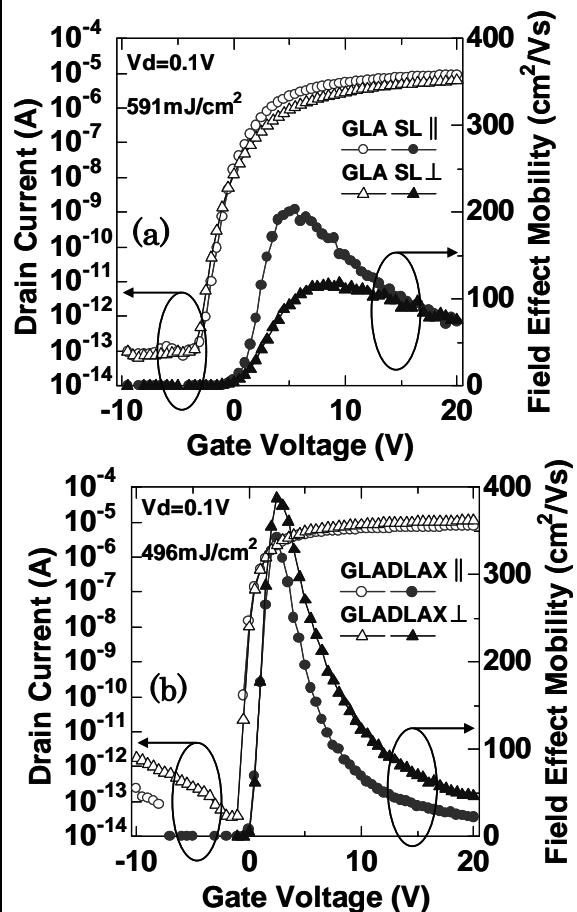


Fig.6 薄膜トランジスタの伝達特性 (a) 単層膜 (b) 積層膜 (上層)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 17 件)

- ① K. Ohara, I. Yamashita, Y. Uraoka, Thin-Film Transistor Type Flash Memory

- with Biomaterialized Co Nanodots on Silicon-on-Insulator, Japanese Journal of Applied Physics, 49, 04DJ05, 2010, 査読有
- ② K. Yamasaki, M. Ochi, Y. Sugawara, I. Yamashita, Y.Uraoka, Crystallization of an Amorphous Si Thin Film by Using Pulsed Rapid Thermal Annealing with Ni-Ferritin, Journal of the Korean Physical Society, 56, 842, 2010, 査読有
- ③ B. Zheng, M.Uenuma, Y.Uraoka and I.Yamashita, Construction of a ferritin dimer by breaking its symmetry, Nanotechnology, 21, 445602, 2010, 査読有
- ④ S.Yamamoto, T.Okada, Y.Uraoka, I.Yamashita, S.Hasegawa, Static and dynamic observation of supermolecular protein, ferritin using high-speed atomic force microscope, Journal of Applied Physics, 109, 034901, 2010, 査読有
- ⑤ Y. Kawamura, K. Yamasaki, T. Yamashita, Y. Sugawara and Y. Uraoka, Crystallization by Green-laser Annealing for Three-dimensional Device Application, Journal of the Korean Physical Society, 56, 1456, 2010, 査読有
- ⑥ L. Lu, T. Nishida, M. Echizen, K. Uchiyama, and Y. Uraoka, Annealing and Composition Effects of $(\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x})\text{Ta}_2\text{O}_6$ Thin Films Fabricated by Sol-Gel Method, Japanese Journal of Applied Physics, 49, 09MA13, 2010, 査読有
- ⑦ Y. Kawamura, M. Horita and Y. Uraoka, Effect of post thermal annealing of ZnO-TFTs by atomic layer deposition, Japanese Journal of Applied Physics, 49, 04DF19-1~6, 2010, 査読有
- ⑧ N.Zhen, I.Yamashita, M. Uenuma, K.Iwahori, M.Kobayashi and Y.Uraoka, Site-directed delivery of ferritin- encapsulated fold nanoparticles, Nanotechnology, 21, 045305, 2010, 査読有
- ⑨ E.Machida, Y.Uraoka, T.Fuyuki, R. Kokawa, T.Ito, and H.Ikenoue, Characterization of local electrical properties of polycrystalline silicon thin films and hydrogen termination effect by conductive atomic force microscopy, Applied Physics Letters, 94, 182104 1-3, 2009, 査読有
- ⑩ K.Ohara, I.Yamashita, T.Yaegashi, M.Moniwa, H.Yoshimaru, and Y.Uraoka, Floating gate memory with biomaterialized nanodots embedded in High-k gate dielectric, Applied Physics Express, 2, 095001 1-3, 2009, 査読有
- ⑪ T.Sato, A.Ueno, T.Yara, E. Miyamoto, Y.Uraoka, T.Kubota, S. Samukawa, Irradiation-damages in atmospheric plasma used in a resist ashing process for thin film transistors, Japanese Journal of Applied Physics, 48, 03B009, 2009, 査読有
- ⑫ M.Fujii, Y.Uraoka, T.Fuyuki, J.S.Jung and J.Y.Kwon, Experimental and Theoretical Analysis of Degradation in $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-In}_2\text{O}_3\text{-ZnO}$ Thin-Film Transistors, Japanese Journal of Applied Physics, 48, 04C091-1~6, 2009, 査読有
- ⑬ A.Miura, Y.Uraoka, T.Fuyuki, S.Kumagai, S.Yoshii, N.Matsukawa, I.Yamashita, Floating nanodot gate memory fabrication with biomaterialized nanodot as charge storage node, Journal of Applied Physics, Vol.103, 074503-1 ~ 10, 2008, 査読有
- ⑭ M. Fujii, H.Yano, T. Hatayama, Y.Uraoka, T.Fuyuki, J. Sim Jung, J. Yeon Kwon, Thermal analysis of degradation in $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-In}_2\text{O}_3\text{-ZnO}$ thin film transistors, Japanese Journal of Applied Physics, Vol.47, 6236-6240, 2008, 査読有
- ⑮ T.Nakamura, H.Kuraseko, K.Hanazawa, H.Koaizawa, Y.Uraoka, T.Fuyuki, and A.Mimura, Fabrication of Pol-Si films by continuous local thermal chemical vapor deposition on flexible quartz glass substrate, Applied Physics Letters, 93, 241503-1~3, 2008, 査読有
- ⑯ A. Miura, R.Tsukamoto, S.Yoshii, I. Yamashita, Y.Uraoka, T.Fuyuki, Non-volatile flash memory with discrete bionanodot floating gate assembled by protein template, Applied Physics Letters, 19, 255201-1~5, 2008, 査読有
- ⑰ S. Yamamoto, K. Kobayashi, H. Yamada, H. Yoshioka, Y.Uraoka, T.Fuyuki, M. Okuda and I.Yamashita, Surface Potential Evaluations of Ferritin Nanodots by Kelvin Force Microscopy, Journal of Scann Probe Microscope, 3, 1-6, 2008, 査読有
- [学会発表] (計 18 件)
- ① K. Ohara, B. Zheng, M. Uenuma, I. Yamashita and Y. Uraoka, Three Dimensional Floating Gate Memory with Multi-layered Nanodot Array Formed by Bio-LBL, International Conference on Solid State Devices and Materials, Sep.22, 2010, Tokyo
- ② Y. Kawamura, Y. Uraoka, ZnO thin film fabricated by plasma assisted atomic layer deposition, International Conference on Solid State Devices and Materials, Sep.22, 2010, Tokyo
- ③ M. Fujii, J. S. Jung, J. Y. Kwon and Y. Uraoka, The Unique Phenomenon in the Amorphous $\text{In}_2\text{O}_3\text{-Ga}_2\text{O}_3\text{-ZnO}$ TFTs Degradation under the Dynamic Stress, International Conference on Solid State Devices and Materials, Sep.22, 2010, Tokyo
- ④ Y. Tojo, A. Miura, I. Yamashita, and Y. Uraoka, Positional control of crystal grains in silicon thin film utilizing cage shaped protein, International Conference

- on Solid State Devices and Materials, Sep.22,2010, Tokyo
- ⑤ Y. Kobayashi, S. Horiguchi, N. taguchi, M. Susaki, M.Horita and Y. Uraoka, Improvement of the Optical Property of ZnS-based Inorganic EL Phosphors by Microwave Sintering, The Seventeen International workshop on Active-matrix Flatpanel Displays and Devices, July 5, 2010, Tokyo
 - ⑥ B. Zheng, M. Uenuma, I.Yamashita, Y.Uraoka, Delivery of ferritin-encapsulated gold nanoparticles on disordered surface, International Symposium on Technology Evolution for Silicon Nano-Electronics, June 3, 2010, Tokyo
 - ⑦ Y.Tojo, A. Miura, Y.Uraoka, T.fuyuki, and I.Yamashita, Location Controls of Crystallization Areas Utilizing Nickel Ferritins, International Thin-Film Transistor Conference 2010, Jan. 28,2010, Hyogo
 - ⑧ Y. Sugawara, K. Yamazaki, T. Nakamura, H. Koaizawa, A. Mimura, K. Suzuki and Y. Uraoka, Silicon Thin Film Transistor on Quartz Fiber, International Thin-Film Transistor Conference 2010, Jan. 28,2010, Hyogo
 - ⑨ E. Machida, Y. Uraoka and H. Ikenoue, Scanning Probe Microscope Analysis for Electron Trapping and Detrapping in Defect Sites of Polycrystalline Silicon Thin Films, International Thin-Film Transistor Conference 2010, Jan. 28,2010, Hyogo
 - ⑩ K.Ohara, I.Yamashita, and Y.Uraoka, TFT-type Flash Memory with Biomineralized Nanodots on SOI Substrate, International Conference on Solid State Devices and Materials, Oct.8, 2009, Miyagi
 - ⑪ T.Yamashita, Y.Sugawara, Y. Uraoka, Three-Dimensional Device Fabricated with Green Laser, AMFPD '09, July.1, 2009.Nara
 - ⑫ T. Yamashita, Y. Sugawara, Y. Uraoka, T. Fuyuki, M.Kimura, Green Laser Anneling Crystallization for Three-Dimensional Device Application, International Meeting for Future of Electron Devices, Kansai, May 14, 2009, Osaka
 - ⑬ E.Machida, Y.Uraoka, R.Kokawa, T. Ito, H.Ikenoue, Conductivity and Surface Potential Measurements in Poly-Si Thin Films by Scanning Probe Microscopy, International Meeting for Future of Electron Devices, Kansai, May 14, 2009, Osaka
 - ⑭ T. Yamashita, Y.Sugawara, Y.Uraoka, T.Fuyuki, M.Kimura, Green Laser Anneling Crystallization for Three-Dimensional device Application, The 5th International TFT Conference, March.5, 2008, Paris, France
 - ⑮ E.Machida, Y.Uraoka, T.Fuyuki, R.Kokawa, T.Itoh, H.Ikenoue,

- Conductive-AFM Measurements of Poly-Si Thin Film Formed by ELA, The 5th International TFT Conference, March.5, 2008, Paris, France
- ⑯ K.Ohara, Y.Uraoka, T.Fuyuki, I.Yamashita, T.Yaegashi, M.Moniwa, M.Yoshimaru, Floating Gate Memory Based on Ferritin Nanodots with High-K Gate Dielectrics, The 5th International TFT Conference, March.5, 2008, Paris, France
 - ⑰ Y.Sugawara, H.Yano, T.Hatayama, Y.Uraoka, T.Fuyuki, Pulsed Green Laser Anneling Crystallization of Double-Layered Silicon Thin Films, The 5th International TFT Conference, March.5, 2008, Paris, France
 - ⑱ M.Fujii, Y.Uraoka, T.Fuyuki, J.Jun, J.Kwon, Experimental and Theoretical Analysis of In₂O₃-Ga₂O₃-ZnO Thin Film Transistors under Constant Voltage Stress, The 5th International TFT Conference, March.5, 2008, Paris, France

〔図書〕(計1件)

浦岡行治(共著)薄膜材料デバイス研究会, “薄膜トランジスタ”, コロナ社, 2008, 229

〔産業財産権〕

該当なし

〔その他〕ホームページ等

<http://mswebs.naist.jp/LABs/uraoka/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

浦岡 行治 (URAOKA YUKIHARU)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・教授

研究者番号：20314536

(2) 研究分担者

木村 睦 (KIMURA MUTSUMI)

龍谷大学・理工学部・教授

研究者番号：60368032

(3) 連携研究者

冬木 隆 (FUYUKI TAKASHI)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・教授

研究者番号：10165459

畑山 智亮 (HATAYAMA TOMOAKI)

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：90304162

矢野 裕司 (YANO HIROSHI)

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：40335485