



ENTE PER LE NUOVE TECNOLOGIE,
L'ENERGIA E L'AMBIENTE

Serie Innovazione

CRISTALLIZZAZIONE DI SILICIO AMORFO VIA LASER: RAPPORTO DEGLI ESPERIMENTI A FRASCATI (PROGETTO FOTO)

SARAH BOLLANTI, PAOLO DI LAZZARO, DANIELE MURRA

ENEA - Divisione Fisica Applicata
Centro Ricerche Frascati, Roma

ANTONIO IMPARATO, CARLO PRIVATO

ENEA - Divisione Fonti Rinnovabili
Centro Ricerche Portici, Napoli

ROBERTO CARLUCCIO, GUGLIELMO FORTUNATO,
LUIGI MARIUCCI, ALESSANDRO PECORA

CNR IESS, Roma

RT/INN/2000/12

This report has been prepared and distributed by: Servizio Edizioni Scientifiche - ENEA
Centro Ricerche Frascati, C.P. 65 - 00044 Frascati, Rome, Italy

The technical and scientific contents of these reports express the opinion of the authors but not necessarily those of ENEA.

DISCLAIMER

Portions of this document may be illegible in electronic image products. Images are produced from the best available original document.

CRISTALLIZZAZIONE DI SILICIO AMORFO VIA LASER: RAPPORTO DEGLI ESPERIMENTI A FRASCATI (PROGETTO FOTO)

Riassunto

Il macro-obiettivo del Progetto FOTO è la realizzazione di un laboratorio in camera pulita per lo sviluppo di processi atti a fabbricare matrici attive utilizzabili per ottenere schermi piatti a cristalli liquidi (AMLCD, Active Matrix Liquid Crystal Display). Uno dei primi passi del processo consiste nel creare transistori a film sottile (TFT, Thin Film Transistor). A tal fine, è necessario ottenere strati sottili di Silicio policristallino irraggiando films di silicio amorfo con luce laser ultravioletta.

In questo rapporto, presentiamo i risultati degli irraggiamenti di film sottili di silicio amorfo tramite la laser-facility Hercules (eccimero XeCl, $l = 0,308$ mm) effettuati presso il C.R. ENEA di Frascati. La trasformazione di silicio amorfo in silicio policristallino così ottenuta è commentata al variare delle caratteristiche spazio-temporali dell'impulso laser, delle condizioni di irraggiamento e delle caratteristiche del film di silicio amorfo irraggiato.

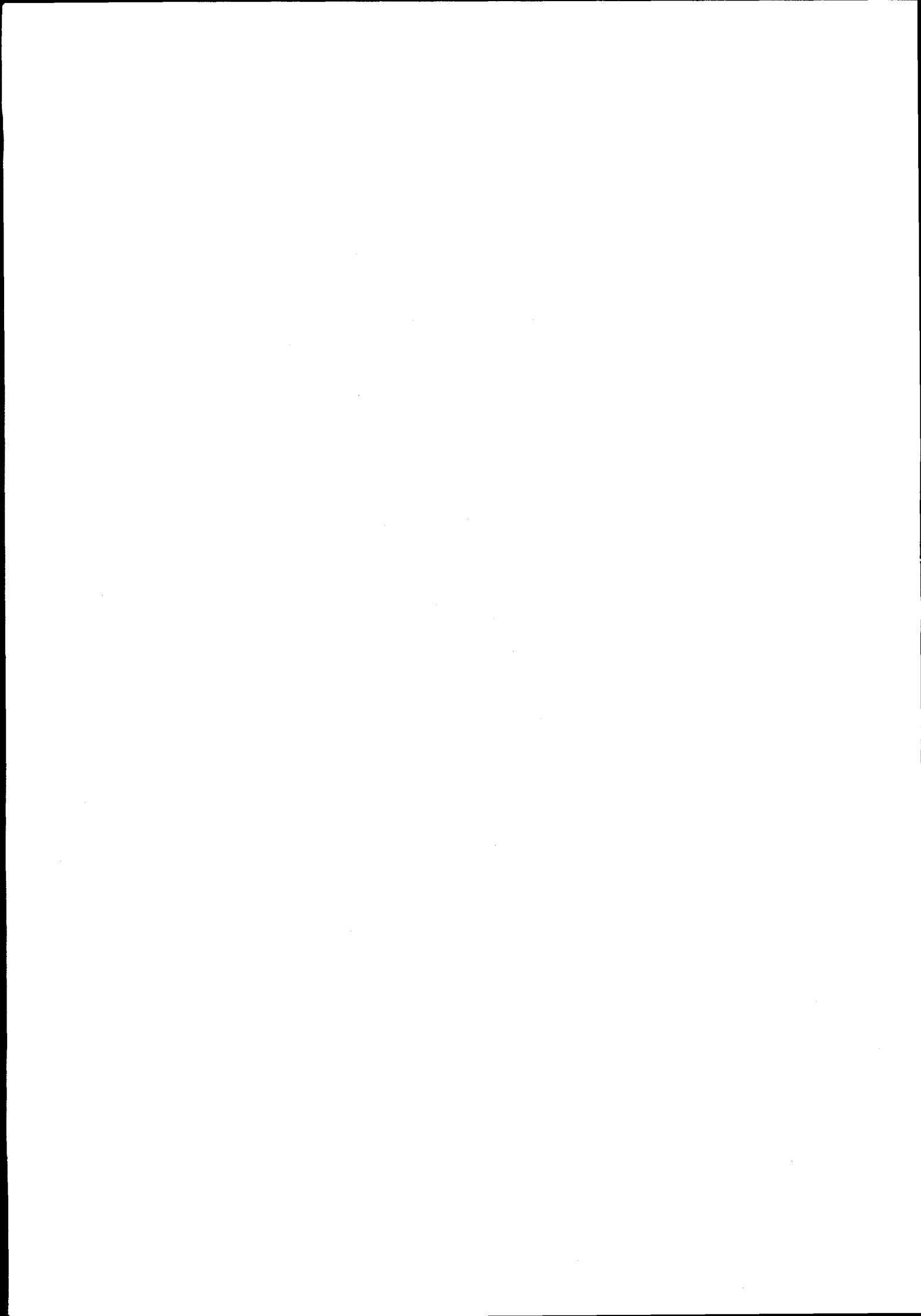
AMORPHOUS SILICON CRISTALLIZATION BY LASER: REPORT OF THE EXPERIMENTS AT FRASCATI (PROJECT FOTO)

Abstract

The final goal of the Project FOTO is the construction of a laboratory in a clean room for the production of active matrix which can be used to obtain Active Matrix Liquid Crystal Displays (AMLCD). The AMLCD are based on Thin Film Transistors (TFT), which can be obtained by poly-silicon (poly-Si) thin films, achieved, e.g., by irradiating films of amorphous silicon (a-Si) by ultraviolet laser radiation.

In this report, we present the results of the a-Si irradiation by using the laser-facility Hercules (excimer XeCl, $l = 0,308$ mm) done at the ENEA Frascati Centre. The transformation of a-Si into poly-Si is commented upon the variation of the space-time characteristics of the laser pulses, of the irradiation conditions and of the characteristics of the irradiated a-Si films.

Key words: excimer laser, beam homogeniser, laser annealing, super-lateral growth)



INDEX

INTRODUZIONE	7
1. LA SORGENTE LASER	9
2. L'OMOGENEIZZATORE	11
3. LA CAMERA DI INTERAZIONE, LA SLITTA ED IL CONTROLLO REMOTO	13
4. STRUMENTI PER L'ANALISI DEI CAMPIONI IRRAGGIATI	14
5. PROVE EFFETTUATE E RISULTATI SPERIMENTALI	18
6. TECNICHE PER LA CRESCITA CONTROLLATA DEI GRANI GIGANTI E POSSIBILI SVILUPPI	28
7. CONCLUSIONI	35
BIBLIOGRAFIA	38



CRISTALLIZZAZIONE DI SILICIO AMORFO VIA LASER: RAPPORTO DEGLI ESPERIMENTI A FRASCATI (PROGETTO FOTO)

INTRODUZIONE

La cosiddetta "TV-on-the-wall" (un televisore a schermo piatto, avente diagonale di 1 metro e spessore di 1 centimetro) è stato un sogno a lungo vagheggiato in passato, che sta diventando realtà. Alla base di queste TV da appendere come quadri alle pareti domestiche (ma anche alla base degli schermi di playstation e computer portatili, di navigatori satellitari per automobili, di visiere per elmetti militari) ci sono microcircuiti al silicio ed uno schermo a cristalli liquidi a matrice attiva (AMLCD), un microcircuito elettronico avente dimensioni macroscopiche. Contrariamente al classico cinescopio sotto vuoto, nello schermo a matrice attiva piccole quantità di carica elettrica, erogate da una griglia di transistori, regolano l'intervento e la luminosità dei singoli elementi d'immagine (pixel). Date le dimensioni in gioco, è necessario realizzare micro-transistori (TFT) ad elevata mobilità: ciò si può ottenere ricristallizzando films di silicio amorfo (a-Si) depositato su pannelli. A tale scopo, si può procedere con una tecnica "calda" (cottura in forno del film di a-Si depositato su pannelli di quarzo), oppure "fredda" (fusione del film di a-Si depositato su pannelli di vetro comune tramite radiazione laser). La tecnologia più attraente (che permette uno "scaling-up" delle dimensioni senza aggravii di costo del materiale) è quella fredda. Per quanto riguarda la scelta del tipo di laser, è necessario tenere conto delle caratteristiche richieste al processo. Per esempio:

- 1) Un impulso laser di breve durata garantisce un processo freddo (il substrato non si scalda). Tuttavia, non conviene lavorare con impulsi troppo brevi: infatti, impulsi con un lungo trailing edge rallentano la velocità di raffreddamento del Si fuso, e i grani di Si ricristallizzato aumentano di dimensione (e quindi aumenta la mobilità ad effetto campo del TFT). In pratica, una durata laser di 100 ns sembra più conveniente di una da 10 ns;

- 2) per raggiungere una elevata temperatura per unità di volume di Si fuso senza scaldare il substrato, l'energia laser deve essere assorbita in spessori dell'ordine di (10 – 100) nm. E' pertanto necessaria una radiazione laser ultravioletta;
- 3) la densità di energia laser ultravioletta di soglia per attivare il processo oscilla da 0,3 J/cm² a 0,5 J/cm².
- 4) per avere uno schermo di migliore qualità, i vari TFT (disposti con una densità media di circa 3×10³ cm⁻²) devono avere caratteristiche elettriche (e quindi dimensioni) simili. Di conseguenza, l'uniformità spaziale dell'energia laser deve essere più elevata del 95%;

Per soddisfare le richieste implicite ai punti 1), 2), e 3) il laser ad eccimero è la scelta ottimale. Per soddisfare la richiesta implicita al punto 4) è necessario un omogeneizzatore spaziale di fascio laser.

In questo rapporto, oltre ad introdurre il lettore nell'argomento della dinamica delle trasformazioni di fase che avvengono a seguito dell'interazione laser-silicio (per gli approfondimenti si rimanda all'ampia letteratura disponibile [1]), intendiamo esporre in dettaglio i risultati delle misure di ricristallizzazione effettuate a Frascati nell'ambito del Progetto FOTO [2], un esempio di proficua collaborazione interdisciplinare tra varie competenze specialistiche (laser, materiali, dispositivi a stato solido, diagnostiche) presenti in ENEA e nel CNR-IESS.

Indipendentemente dal Progetto FOTO, l'ENEA aveva realizzato in passato alcuni esperimenti di ricristallizzazione del silicio amorfo con la sorgente laser Hercules presso i laboratori di Frascati, in collaborazione con un'industria giapponese. Al di là dei risultati incoraggianti ottenuti, che dimostravano la capacità della sorgente di cristallizzare lastre da 1 m² con fascio laser sagomato nelle dimensioni di 150 cm x 1 cm, non era stato possibile allora eseguire analisi sistematiche di questo processo. Né era stato possibile investigare i problemi legati all'omogeneizzazione del fascio laser (profilo di intensità flat-top), avendo potuto utilizzare soltanto omogeneizzatori altrui, con disegno proprietario.

Nel progetto FOTO è stato inizialmente stabilito di realizzare tali esperimenti per:

- mettere a punto le tecniche di controllo spaziale del fascio laser utilizzato per l'irraggiamento,
- stabilire delle condizioni di riferimento per il processo,
- qualificare il materiale ricristallizzato da un punto di vista microscopico,
- stabilire eventuali interventi migliorativi da effettuare prima dell'utilizzo della nuova sorgente laser Hercules L, che concettualmente rappresenta la evoluzione di Hercules verso energie di uscita più elevate (10 J/impulso).

Per motivi logistici, si è ritenuto di svolgere questi esperimenti utilizzando materiale precursore prodotto al CNR-IESS e ad ENEA Portici, coinvolgendo principalmente il sistema di ricristallizzazione laser realizzato a Frascati e le attrezzature analitiche disponibili presso il CNR-IESS.

1. LA SORGENTE LASER

Il sistema laser utilizzato per le prove di irraggiamento di films di silicio amorfo è la sorgente denominata Hercules [3], progettata e costruita da ENEA, attualmente funzionante presso il Laboratorio Eccimeri del Centro ENEA di Frascati ed utilizzata come *laser facility* per diverse applicazioni, scientifiche ed industriali, su richiesta di utenti italiani ed esteri (vedi figura 1).

Hercules è un laser ad eccimero XeCl, che emette radiazione alla lunghezza d'onda $\lambda = 308$ nm, nel vicino ultravioletto. Il mezzo attivo è una miscela gassosa costituita da neon, xenon ed acido cloridrico nelle proporzioni 2050:9:1, ad una pressione totale di 3,5 bar assoluti. La cavità ottica impiegata per queste prove è un risonatore a specchi piani e paralleli, di cui uno è totalmente riflettente e l'altro ha un coefficiente di riflessione pari al 30%. In questa configu-

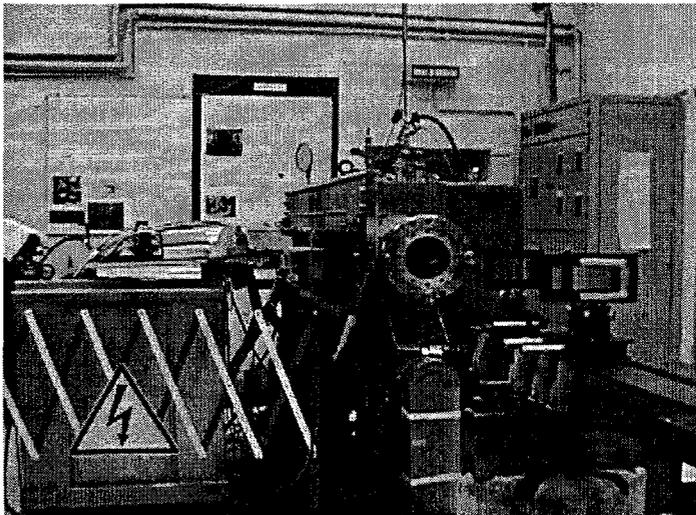


Figura 1 - Foto del laser Hercules. Davanti all'uscita del fascio laser sono visibili i primi tre elementi ottici dell'omogeneizzatore di fascio (vedi paragrafo 2).

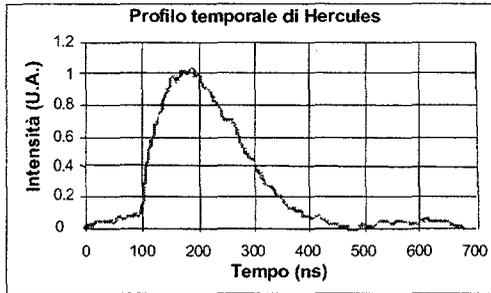


Figura 2 - Profilo temporale dell'impulso laser

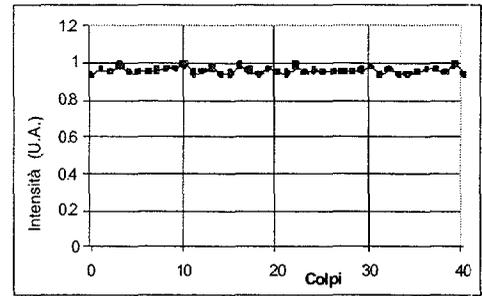


Figura 3 - Fluttuazioni dell'intensità su 40 colpi dell'impulso laser

razione Hercules emette impulsi laser della durata a metà altezza di 160 ns (fig. 2) e con un'energia massima di 8 J. La corrispondente potenza di picco è 50 MW. Il fascio laser emesso ha una sezione rettangolare le cui dimensioni sono $x = 10$ cm e $y = 5$ cm, dove x è l'asse parallelo al campo elettrico ed al pavimento, e y è l'asse verticale. La distribuzione spaziale di intensità ha un profilo supergaussiano di ordine 8 lungo x e di ordine 6 lungo y . Attualmente Hercules è in grado di funzionare a frequenza di ripetizione $f \leq 5$ Hz utilizzando un sistema di ricircolo longitudinale del gas.

Per inciso, l'industria EL.EN. di Calenzano (FI) sta costruendo una sorgente analoga ad Hercules (chiamata "Hercules L"), le cui caratteristiche di progetto sono le seguenti: $\lambda = 308$ nm, pressione totale del mezzo attivo = 5 bar, energia per impulso = 10 J, durata impulso = (100 ÷ 150) ns, dimensioni dell'emissione laser = 10 cm x 5 cm, frequenza di ripetizione = 10 Hz.

Numerose misure sperimentali hanno caratterizzato il fascio laser di Hercules, sia per quanto riguarda la stabilità, sia la qualità ottica del fascio. Per le applicazioni previste dal progetto FOTO una delle caratteristiche più importanti è la riproducibilità dell'energia laser che, a $f = 1$ Hz, è si è rivelata molto buona, con fluttuazioni da colpo a colpo inferiori al 5%, come risulta dalla figura 3.

Il processo ottimale di ricristallizzazione del silicio amorfo richiede una notevole uniformità della distribuzione spaziale dell'energia laser ($\Delta I/I \ll 10\%$). Pertanto, è stato usato un sistema ottico in grado di attenuare fluttuazioni locali di intensità e, allo stesso tempo, di distribuire l'energia del fascio su un'area rettangolare di circa (13×1) cm². Per avere l'uniformità richiesta su una certa lunghezza è necessario che il fascio abbia un'estensione superiore almeno del 20% a tale lunghezza. Di conseguenza, per irraggiare pannelli quadrati aventi lato 10 cm il fascio deve essere dimensionato a 13 cm lungo x . L'altra dimensione, pari ad 1 cm, deriva dalla necessità di avere una densità di energia superiore a 0.3 J/cm², che è il valore di

fluenza di soglia per la cristallizzazione del silicio, ottenuto in precedenti esperimenti. Il sistema ottico utilizzato è un omogeneizzatore, descritto nella sezione seguente.

2. L'OMOGENEIZZATORE

Questo sistema ottico consiste in 4 elementi (lenti cilindriche) e in uno specchio a 45°, utile a rinviare il fascio laser verso il basso, come schematizzato in fig. 4. Compito dell'omogeneizzatore è di trasformare le dimensioni del fascio laser da $(10 \times 5) \text{ cm}^2$ a $(13 \times 1) \text{ cm}^2$ migliorando l'uniformità spaziale dell'energia laser.

Il processo di omogeneizzazione avviene suddividendo il fascio in N sezioni orizzontali ed altrettante verticali che sono poi ricombinate su di un unico piano in modo da sovrapporsi perfettamente. La trasformazione delle dimensioni si attua con una scelta appropriata dei parametri degli elementi ottici. Tale scelta deve far sì che non si abbiano a verificare fenomeni di interferenza durante la sovrapposizione di diverse porzioni dello stesso fascio laser. Per evitare l'interferenza è necessario che le dimensioni delle lenti che dividono il fascio siano molto più grandi della lunghezza di coerenza spaziale dell'impulso laser. Nel caso di Hercules con risonatore piano-piano, il teorema di Cittert Zernike [4] predice una lunghezza di coerenza spaziale inferiore a 0,1 cm su entrambe le direzioni ortogonali. D'altra parte, per avere una buona uniformità è necessario suddividere il fascio nel numero più grande possibile di porzioni. Il compromesso adottato è di usare $N = 4$ lenti per la suddivisione orizzontale (di larghezza pari a 2,5 cm, circa 50 volte la lunghezza di coerenza lungo l'asse corrispondente), ed altrettante per la suddivisione verticale (di altezza pari a 1,25 cm, oltre 12 volte la lunghezza di coerenza lungo l'asse corrispondente). Per determinare i parametri in modo che il fascio abbia le dimensioni finali desiderate, è sufficiente esaminare il funzionamento dell'omogeneizzatore lungo una direzione (p. es. quella orizzontale), dal momento che esso lavora indipendentemente sulle due direzioni ortogonali, vedi figura 5. Il

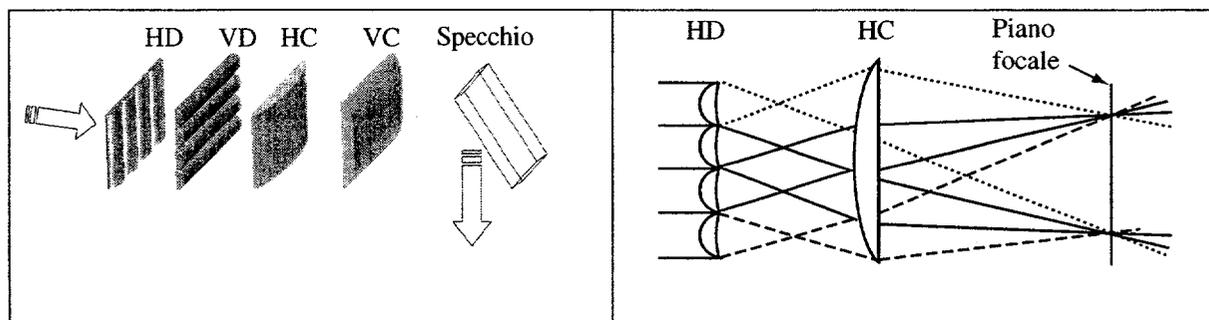


Figura 4 - Schema dell'omogeneizzatore.
Per i simboli vedi il testo

Figura 5 - Schema a due lenti e principio di funzionamento dell'omogeneizzatore

fascio che incide sulle lenti HD (*Horizontal Divider*) viene separato in 4 sezioni che separatamente focalizzano e poi divergono sino ad incontrare la lente HC (*Horizontal Condenser*). Da questo punto, ogni raggio viene deviato secondo un angolo diverso e sul piano focale di HC le quattro sezioni di fascio si ricombinano su un unico spot. Indicando rispettivamente con F_{HD} e F_{HC} le focali delle lenti HD ed HC, e con d la dimensione delle lenti HD, alla distanza F_{HC} dalla lente HC si avrà la sovrapposizione dei 4 fasci con una dimensione pari a $s = d \times F_{HC}/F_{HD}$. Ovviamente, i piani focali di HC e VC (*Vertical Condenser*) devono coincidere spazialmente in quello che chiameremo piano focale dell'omogeneizzatore. Nel nostro caso, in direzione orizzontale si ha $d=2.5$ cm, $F_{HC} = 120$ cm e $F_{HD} = 22.5$ cm, quindi $s = 13.3$ cm; in direzione verticale $F_{VD} = 50$ cm, $F_{VC} = 44$ cm e $d = 1.25$ cm, quindi $s = 1.1$ cm. Il cammino ottico dell'omogeneizzatore, dalla prima serie di lenti al piano focale, è di circa 170 cm, mentre l'ingombro orizzontale, cioè sino allo specchio a 45° , è di circa 140 cm. I primi tre elementi ottici dell'omogeneizzatore sono visibili in figura 1, davanti a Hercules. La trasmissione totale dell'omogeneizzatore, le cui lenti sono rivestite da uno strato antiriflesso per incidenza normale, è risultata del 70%, quindi la massima densità di energia raggiungibile sul piano focale dell'omogeneizzatore è pari a circa 0.38 J/cm^2 .

Dopo un attento allineamento delle varie lenti dell'omogeneizzatore effettuato attraverso l'ausilio di un laser di puntamento He-Ne, sono state fatte misure per il controllo dell'uniformità del fascio laser sul piano focale. Queste misure sono state realizzate usando un misuratore di energia ad elevata sensibilità (3 V/mJ) o, in alternativa, un fototubo, fissato su una slitta a motore passo-passo comandata da computer (vedi sezione 4), e dotato di diaframma da $200 \mu\text{m}$ di diametro per avere un'adeguata risoluzione spaziale. Sono state eseguite scansioni lungo il lato lungo (direzione x) per circa 15 cm con passo da 1 mm e sul lato corto (direzione y) per circa 1.4 cm con passo da 0.5 mm, mantenendo sempre il diaframma sul piano focale. Il risultato è mostrato nelle figure 6 e 7. Le fluttuazioni di intensità, lungo la zona piatta dei profili, presentano una varianza pari al 2% sia lungo x che y , mentre lo scarto massimo (distanza picco-picco), è pari al 7% in x ed al 4% in y .

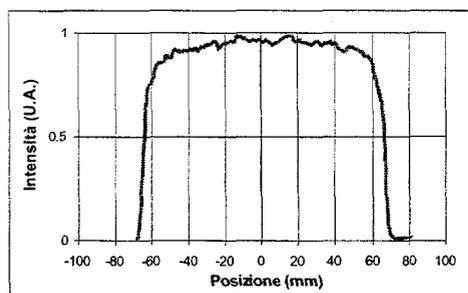


Figura 6 - Profilo d'intensità laser lungo x

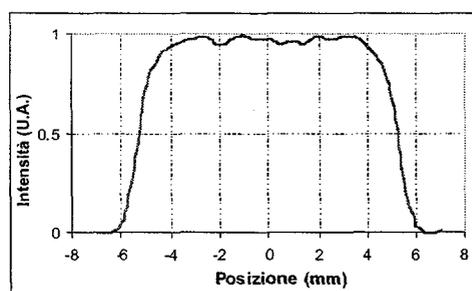


Figura 7 - Profilo d'intensità laser lungo y

3. LA CAMERA DI INTERAZIONE, LA SLITTA ED IL CONTROLLO REMOTO

L'irraggiamento del silicio amorfo deve avvenire in alto vuoto o in atmosfera controllata, in modo da evitare inquinamento di agenti esterni e attacchi da elementi ossidanti. Inoltre, per rendere più efficace la trasformazione del silicio da amorfo a cristallino è conveniente effettuare gli irraggiamenti in condizioni di temperatura elevata (tipicamente 400-600 °C). Questo per rallentare il processo di raffreddamento del silicio irraggiato ed aumentare il tempo d'espansione dei microcristalli durante la transizione liquido-solido.

E' stata pertanto approntata una camera da vuoto, con dimensioni di circa 15 cm di altezza per una base circolare di circa 20 cm di diametro, in cui è collocata una piastra di rame di (10×10) cm² riscaldabile sino a 600 °C, su cui poter poggiare i pannelli di silicio (vedi fig.8). La camera è collegata ad una pompa turbo-molecolare ed il suo involucro d'acciaio è raffreddato da un circuito ad acqua. La pressione della camera e la temperatura della piastra in rame sono misurate rispettivamente da un sensore Pirani e da una termocoppia.

La chiusura della camera di interazione verso il fascio laser è assicurata da una finestra circolare di quarzo di circa 1 cm di spessore, che garantisce una trasmissione del 92% (ed una corrispondente fluensa massima sul silicio pari a circa 0.35 J/cm²). Per irraggiare l'intera superficie del pannello di (10×10) cm² con un fascio laser che nel piano di interazione è di (13×1) cm², è necessario muovere il pannello tra colpi successivi. A questo fine, è stata utilizzata una slitta micrometrica con motore passo-passo, sulla quale è fissata l'intera camera di interazione. La slitta ha una corsa di 20 cm, una velocità massima di 5 cm/s ed una precisione di posizionamento pari ad 1 µm. Essa è comandata da una scheda posta nel computer che controlla il processo.

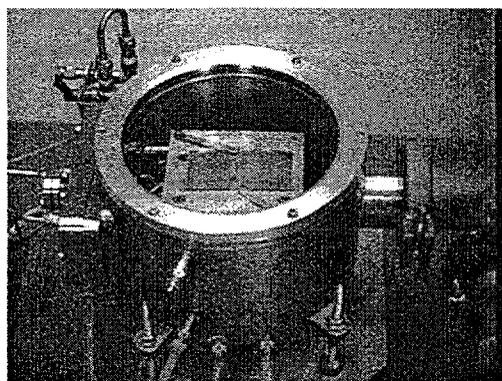


Figura 8 - Foto della camera di interazione. All'interno è visibile la piastra in rame su cui è poggiato un pannello di silicio.

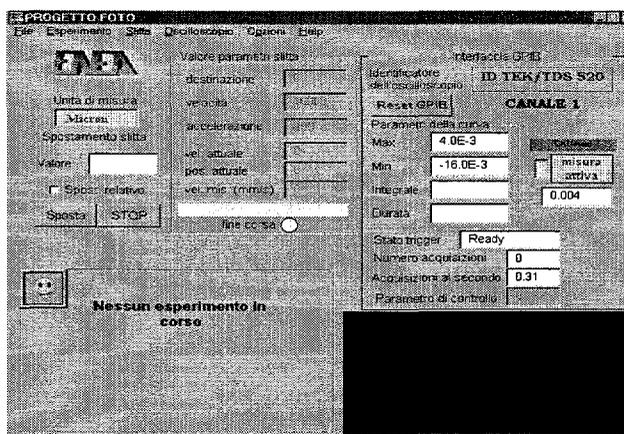


Figura 9 - Interfaccia utente del software di gestione e controllo del processo.

Sia per le prove di irraggiamento che per quelle di controllo stabilità ed omogeneità del fascio laser, è stato messo a punto un software *ad hoc*, scritto in Visual C++ su sistema operativo Windows 95, che è in grado di pilotare la slitta, dare il segnale di trigger al laser ed acquisire i parametri desiderati da un oscilloscopio collegato tramite l'interfaccia GPIB. In fig. 9 è riportata l'interfaccia utente di tale software. Durante le prove di omogeneità, erano collegati all'oscilloscopio il fototubo con il pinhole (descritto nella sez. 2), che misurava l'intensità puntuale del laser, ed un rivelatore dell'energia totale usato come parametro di normalizzazione.

La procedura sperimentale è stata la seguente:

- a) impostazione dei parametri desiderati (lunghezza totale della scansione, passo della slitta o percentuale di sovrapposizione di colpi successivi, frequenza di ripetizione di Hercules, numero di colpi su cui mediare su ogni posizione);
- b) avvio del programma (trigger al laser, acquisizione valori dall'oscilloscopio, spostamento slitta e via di seguito);
- c) salvataggio dei dati finali per la successiva elaborazione.

Durante la fase b) il programma controlla la stabilità del laser da impulso ad impulso ed ha la possibilità, a fine scansione, di riposizionare la slitta sui punti in cui si è verificato un irraggiamento con energia insufficiente, consentendo di effettuare un ulteriore colpo.

4. STRUMENTI PER L'ANALISI DEI CAMPIONI IRRAGGIATI

La cinetica delle trasformazioni di fase indotte dall'assorbimento della radiazione laser nel film di silicio è complessa poiché coinvolge processi al di fuori dell'equilibrio termodinamico. Durante l'irraggiamento del materiale semiconduttore con fotoni di energia sufficiente ($h\nu > E_{\text{gap}}$), l'assorbimento dell'energia del laser avviene per eccitazione di coppie elettrone-lacuna. Queste coppie si riequilibrano termicamente in circa 10^{-14} s e trasferiscono infine l'energia al reticolo in tempi dell'ordine del picosecondo (10^{-12} s). Nel caso dell'irraggiamento di silicio amorfo con luce laser UV, la maggior parte dell'energia dell'impulso è assorbita nei primi 10 nm di spessore del materiale e trasferita successivamente per conduzione termica agli strati inferiori che durante l'esposizione alla luce laser possono considerarsi sostanzialmente freddi.

Lo schema di figura 10 rappresenta i regimi intorno ai quali si innestano le trasformazioni che avvengono nel silicio. Secondo la densità di energia del laser, possiamo distinguere tre classi principali di trasformazione. Per energie superiori alla soglia di fusione della superficie, il

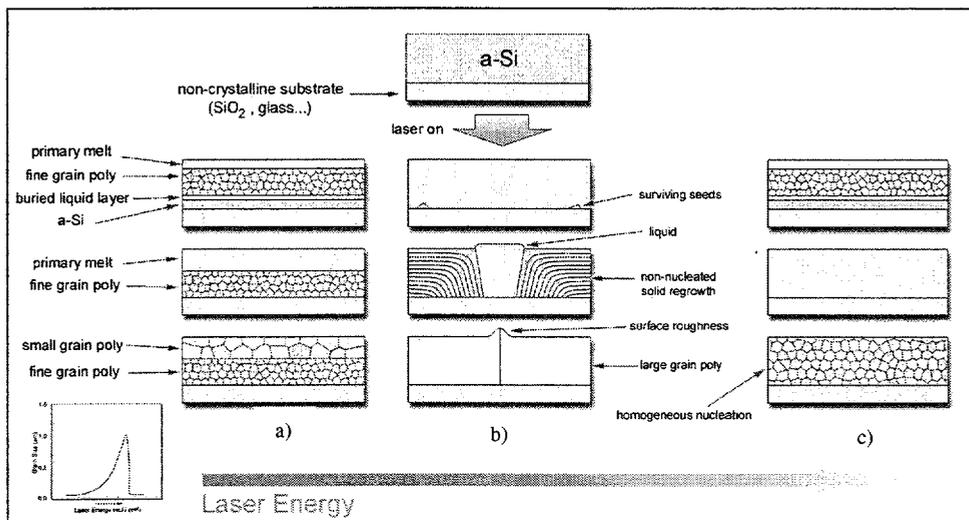


Figura 10 - Schema qualitativo del processo di ricristallizzazione

film di silicio amorfo e soggetto a una parziale fusione (vedi fig.10a). La struttura risultante consiste principalmente di due strati differenti: uno strato superiore a grani grandi (il cui spessore è legato alla fusione primaria indotta dal laser) ed uno strato sottostante a grana fine, legato alla cosiddetta cristallizzazione esplosiva. Per energie crescenti, la dimensione media dei grani aumenta, raggiungendo un massimo quando il film di silicio è quasi totalmente fuso, e solo pochi nuclei cristallini distribuiti casualmente sopravvivono nel liquido (vedi fig.10b). Quando si verifica questa condizione i grani possono crescere lateralmente intorno ai semi finché non arrivano ad incontrarsi. In questo regime, conosciuto come *Super Lateral Growth* (SLG), si possono ottenere grani di dimensioni superiori al micrometro. A densità d'energia più alte il film fonde completamente: in questa situazione il processo di raffreddamento del liquido, molto rapido, può portarlo al di sotto della temperatura di solidificazione (vedi fig.10c). A queste temperature (condizione di sottoraffreddamento), s'innescano i processi di nucleazione spontanea che producono nuclei cristallini distribuiti uniformemente nel liquido. La cristallizzazione in questa condizione porta a una struttura finale in cui la dimensione media dei grani è dell'ordine di (50-100) nm.

Per l'analisi strutturale dei film e la determinazione della geometria e dimensione dei grani ottenuti, abbiamo utilizzato varie tecniche di microscopia, ognuna delle quali è in grado di fornire informazioni specifiche. Una prima caratterizzazione dei film è fatta al microscopio ottico, utilizzando la tecnica dell'illuminazione in campo oscuro. Con questa tecnica i campioni sono illuminati con un fascio di luce radente, quasi parallelo al piano del film. La luce raccolta dall'obiettivo del microscopio è quindi solo quella diffusa dalle strutture presenti

sulla superficie. L'immagine che si ottiene evidenzia quindi come più chiare le parti più rugose e di dimensioni sufficienti a essere rivelate in luce visibile, cioè superiori a qualche centinaio di nanometri. Poiché le dimensioni dei grani nel regime di SLG sono dell'ordine del micrometro, questa tecnica si rivela essere molto utile per una caratterizzazione rapida del materiale e per un'individuazione delle zone da investigare più approfonditamente con le altre tecniche microscopiche a disposizione, più laboriose in termini di preparazione del campione.

Per la caratterizzazione diretta della forma e dimensione dei grani alla superficie abbiamo utilizzato la microscopia elettronica di scansione (SEM). La macchina a disposizione del CNR-IESS è il modello commerciale Stereoscan 360 della Cambridge Instruments, in grado di fornire ingrandimenti che variano con continuità da 10 a 300.000 volte. L'analisi tramite SEM prevede un trattamento preliminare del film di silicio con un attacco chimico selettivo (Secco etching), che rimuove preferenzialmente il materiale amorfo localizzato ai bordi del grano evidenziando la struttura cristallina. Successivamente è necessario ricoprire il film isolante con uno strato conduttivo che evita il fenomeno di accumulo di carica elettrica della zona di scansione. Allo scopo viene depositato uno strato di oro di (10-20) nm di spessore mediante sputtering. Con la microscopia SEM si evidenziano le strutture geometriche di ricrescita e si caratterizza rapidamente la distribuzione di grani nel film.

Per avere informazioni più approfondite sulla topografia, cioè sulle variazioni di altezza dovute ai fenomeni di trasporto di massa, è necessario utilizzare la microscopia a forza atomica (AFM), che permette un'analisi statistica quantitativa della rugosità superficiale. La macchina utilizzata a questo scopo è il modello *Dimension 3100* della *Digital Instruments*, capace di eseguire scansioni in varie modalità d'interazione. Per l'analisi dei film di silicio abbiamo utilizzato prevalentemente il *contact mode* in cui la punta è mantenuta in contatto continuo con il film ad una forza d'interazione costante. Più raramente (ed in genere per campioni in cui è necessario una più limitata interazione ed una maggiore sensibilità) abbiamo usato il *tapping mode*, tecnica in cui la punta viene fatta oscillare alla frequenza di risonanza ed il suo moto è rivelato per mezzo di un sistema lock-in. Dalla variazione di ampiezza e fase durante l'interazione della punta col campione si ottengono informazioni sulla topografia del materiale, ma anche su grandezze quali la durezza locale e l'elasticità locale del film. Le informazioni riguardanti la topografia del film ricristallizzato sono importanti ai fini della comprensione dei processi coinvolti ma anche della caratterizzazione del film ai fini di un suo utilizzo nella produzione di dispositivi elettronici. E' noto, infatti, che, specialmente nel regime di SLG, i processi di fusione-solidificazione sono accompagnati da variazioni di densità del materiale che causano trasporto di materia trasversalmente al film, con conseguente innalzamento di quest'ultimo in corrispondenza dei bordi di grano.

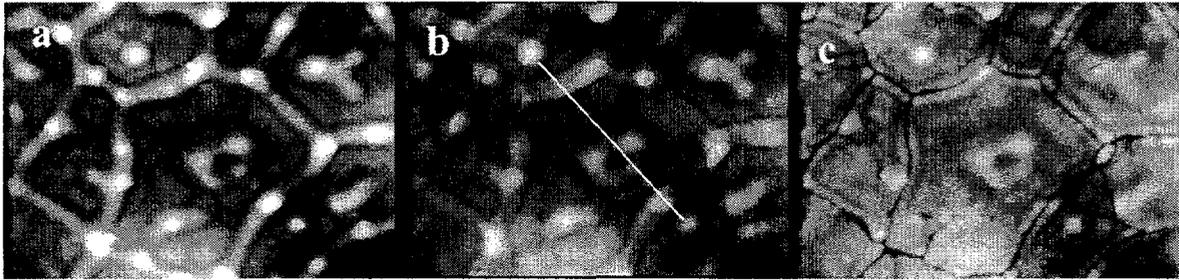


Figura 11 - Topografia AFM di una zona ricristallizzata (a) e trattata con due Secco etching successivi: (b) 5 sec. e (c) 12 sec.

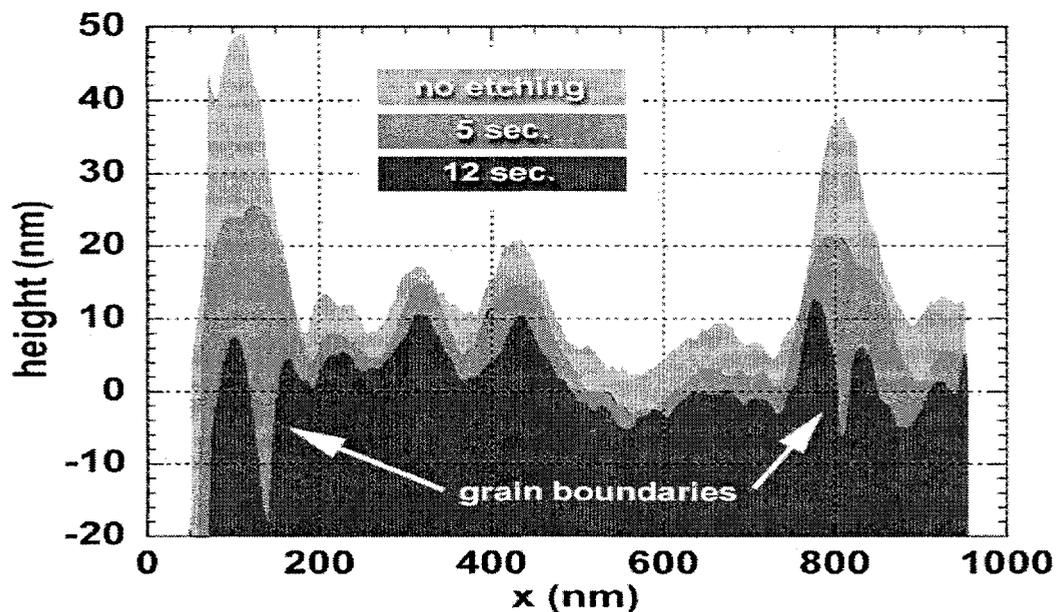


Figura 12 - Andamento dello spessore del film lungo una sezione presa in corrispondenza di un grano

In figura 11 è riportata una sequenza di misure AFM prese nello stesso punto del film: così come irraggiato (a) e quindi sottoposto a due etching successivi (b, c). La figura 12 mostra il confronto di una sezione presa sulle tre topografie AFM di figura 11.

Il parametro di rugosità può essere definito in modi differenti: nel nostro caso consideriamo diverse grandezze derivate dalla distribuzione delle altezze $z(x,y)$. In particolare per ogni misura consideriamo il valore dello scarto quadratico medio S_q e la dispersione massima (valore picco-picco). Insieme a questi valori sarà talvolta considerata anche la S_{ku} (Surface Kurtosis) che riporta un valore proporzionale alla "piccosità" della distribuzione delle altezze all'interno del campione di misura. Le S_q ed S_{ku} sono definite dalle equazioni:

$$S_q = \sqrt{\frac{1}{M \times N} \sum_{k=0}^{M-1} \sum_{l=0}^{N-1} z^2(x_k, y_l)} \quad S_{ku} = \frac{1}{MNS_q^4} \sum_{k=0}^{M-1} \sum_{l=0}^{N-1} z^4(x_k, y_l)$$

5. PROVE EFFETTUATE E RISULTATI SPERIMENTALI

Il materiale usato per le prove è silicio amorfo depositato su di un'interfaccia di 300 nm di nitruro di silicio e di 200 nm di ossido di silicio, a loro volta depositati su vetro. Prima dell'irraggiamento, il film di silicio amorfo è stato opportunamente deidrogenato per evitarne possibili danneggiamenti dovuti all'improvvisa evaporazione dell'idrogeno durante l'esposizione alla radiazione laser.

Le prime prove hanno riguardato campioni di silicio di spessori compresi tra 60 e 90 nm circa, irraggiati con una fluensa di 0.3 J/cm² sia a spot fermo (da 1 a 30 colpi) che in scansione al 90% di sovrapposizione. Le misure AFM e SEM su questi campioni hanno evidenziato la presenza di grani dell'ordine di 100 nm, uniformemente su tutta la superficie irraggiata ad eccezione delle zone di confine dello spot laser. Queste zone restano visibili all'interno dell'area irraggiata dal laser come immagini ("beam-marking") del confine posteriore dello spot relativamente alla direzione di scansione. Dalle figure 13 e 14 appare evidente come in questo caso il "beam-marking" sia caratterizzato microscopicamente da un cambiamento del regime di cristallizzazione con presenza di aggregati cristallini di dimensioni maggiori e rugosità più accentuate, anche se si è ancora lontani dal regime di SLG a causa del valore di densità di energia utilizzata, troppo basso per questi spessori del film. L'analisi della rugosità di questi films è riportata nel grafico riassuntivo di figura 15. La curva riporta la grandezza S_q in funzione del numero di colpi e vuole dare solo un'indicazione qualitativa di un andamento che si osserva generalmente: al crescere del numero di colpi si ha una riduzione della rugosità media, accompagnata però da un progressivo danneggiamento del film. Nel caso specifico, la risalita della rugosità ad alto numero di colpi è probabilmente legata al danneggiamento (forti variazioni nelle zone in cui il film è saltato).

Non potendo aumentare di molto la fluensa del laser si è deciso di irraggiare, nelle stesse condizioni, film più sottili. Ricordiamo che l'omogeneizzatore è stato progettato per Hercules L, che emetterà una maggiore energia laser.

Per gli irraggiamenti successivi sono stati utilizzati campioni con film di silicio spessi 50 nm, una fluensa media $\langle E \rangle = 0.4 \text{ J/cm}^2$ ed una temperatura nominale di 400 °C. Su questi campioni si sono raggiunti per la prima volta grani di dimensione superiore al micrometro, anche se con una distribuzione di grandezze fortemente disuniforme. La figura 16 riporta fotografie prese al microscopio ottico in questo punto di lavoro.

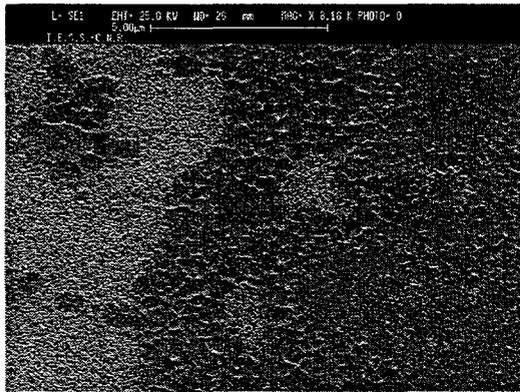


Figura 13 - Immagine SEM dell'effetto "beam marking" di un campione irraggiato in scansione.

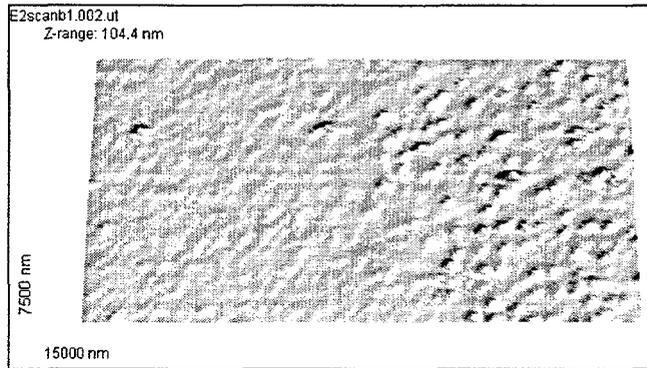


Figura 14 - Immagine AFM dell'effetto di "beam marking" di un campione

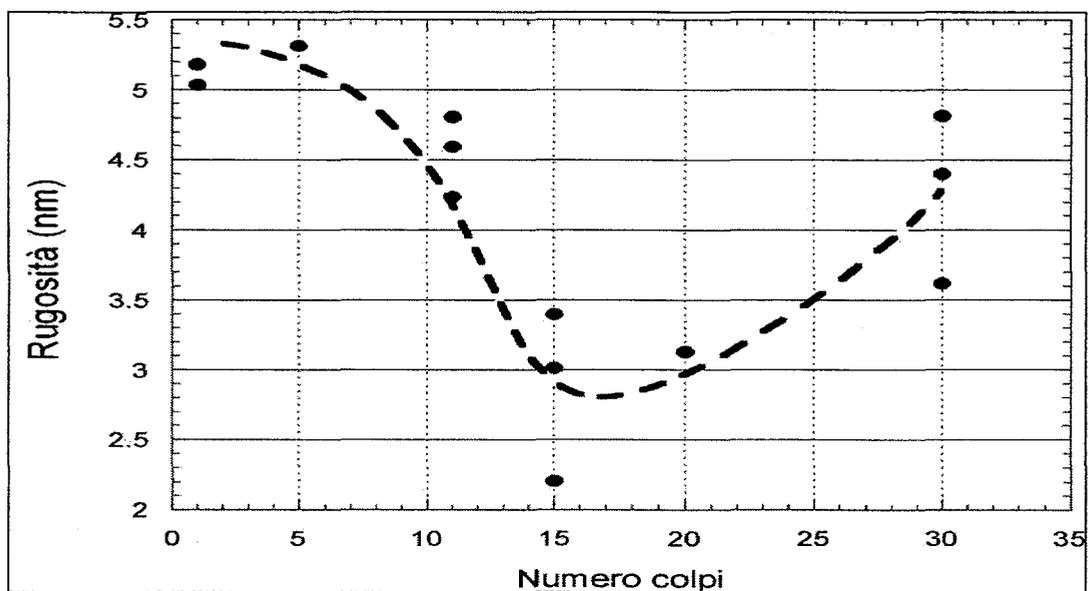


Figura 15 - S_q in funzione del numero di colpi laser.

Le disuniformità osservate, imputabili, come vedremo, a lievi modulazioni nell'intensità spaziale del laser, sono rivelate in maniera evidente perché la Super Lateral Growth è un processo fortemente non lineare in prossimità di un'energia di soglia. Tale valore corrisponde alla fluensa che provoca la liquefazione di tutto lo spessore del silicio. Infatti, dove il silicio è interamente allo stato liquido, la crescita dei grani avviene per nucleazione spontanea e la competizione tra cristalli adiacenti consente loro di accrescersi non oltre poche decine di nm (valore che corrisponde alla distanza media di nucleazione di due grani). In questa zona i cristalli sono invisibili al microscopio ottico mentre il SEM rivela la situazione riportata in

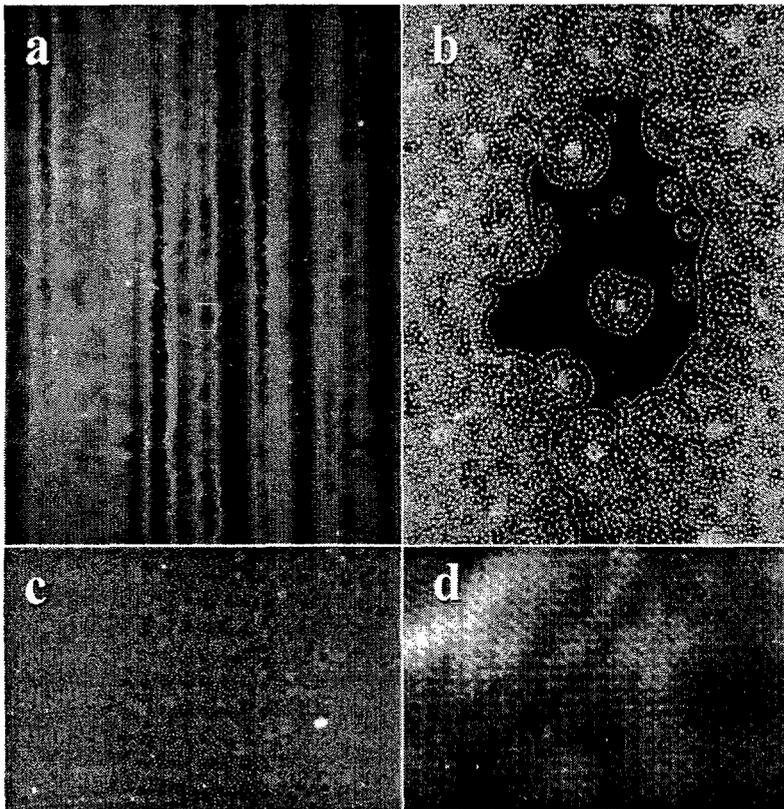


Figura 16 - Fotografie al microscopio ottico con tecnica di campo oscuro di un film di 50 nm di silicio ricristallizzato con il laser Hercules e con una densità di energia $\langle E \rangle = 400 \text{ mJ/cm}^2$, per diversi ingrandimenti: a) 5x, b) particolare della precedente (50x), c) 40x, d) 20x.

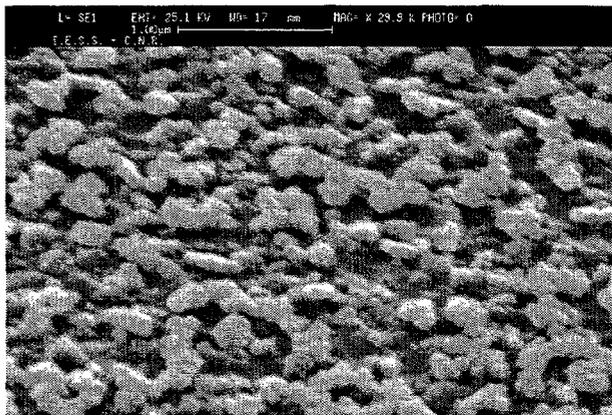


Figura 17 - Immagine SEM di un film di silicio amorfo (dopo Secco etching) ricristallizzato a $\langle E \rangle = 400 \text{ mJ/cm}^2$

figura 17. Invece, in prossimità del confine tra una zona completamente fusa ed una zona fusa parzialmente, i grani che iniziano a svilupparsi in quest'ultima hanno la possibilità di espandersi nella zona liquida, più calda, dove la nucleazione spontanea avrà inizio dopo qualche nanosecondo. In quest'intervallo i cristalli riescono a raggiungere dimensioni superiori ad $1 \mu\text{m}$.

Si sono osservate due tipologie principali di modulazione, su diverse scale di grandezza. La prima, visibile in figura 16a è legata alla comparsa di linee o striature, parallele al lato lungo

dello spot laser, della lunghezza di qualche millimetro e dello spessore variabile nella scala del decimo di millimetro.

L'altro fenomeno osservato in queste condizioni sperimentali è una sorta di "trama" regolare sulla superficie del silicio irraggiato (vedi figura 16 riquadri c, d). Tale trama è costituita da zone in cui la dimensione dei grani varia con regolarità lungo le due direzioni principali della regione irraggiata, ed ha un periodo di circa $14\ \mu\text{m}$ nella direzione orizzontale e di circa $11\ \mu\text{m}$ in quella verticale. La presenza della trama è particolarmente evidente in prossimità delle zone dove si sviluppa la SLG, in cui si ha la maggior sensibilità alle fluttuazioni d'intensità laser. E' da notare che questa *tessitura* regolare era stata già osservata nei campioni più spessi irraggiati precedentemente, anche se su questi ultimi l'effetto della modulazione è molto meno visibile. La figura 18 riporta l'elaborazione di una foto SEM presa sul campione da $63\ \text{nm}$ in cui la trama è evidenziata per mezzo di tecniche di "image-processing".

Una spiegazione a tale fenomeno è data da una variazione locale dell'intensità del laser dovuta ad interferenza, effetto non prevedibile *a priori* vista la bassa coerenza spaziale di Hercules, con la conseguente scelta delle dimensioni delle lenti dell'omogeneizzatore (vedi discussione in merito nella sez. 2), e non rilevabile dalle misure di uniformità dato il diametro del diaframma usato, molto più grande del periodo della trama (vedi sez. 2). Alcune misure sperimentali, volte a chiarire questo punto, hanno dimostrato che l'interferenza si origina dalla diffrazione dei bordi delle lenti dell'omogeneizzatore che dividono il fascio in 4×4 sezioni.

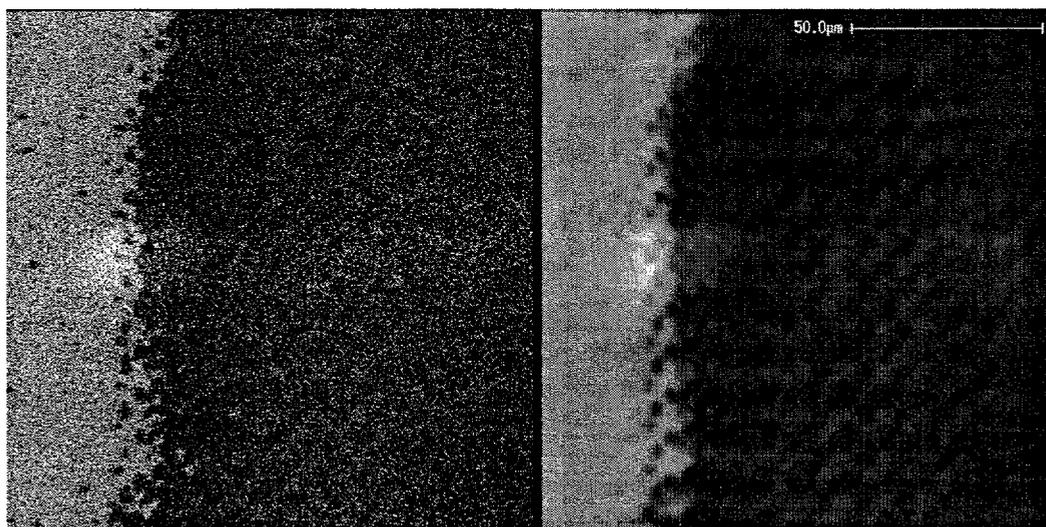


Figura 18 a) Immagine SEM di un film di $63\ \text{nm}$ di silicio ricristallizzato con il laser Hercules e con una densità di energia $\langle E \rangle = 300\ \text{mJ/cm}^2$, b) elaborazione della stessa immagine per evidenziare la trama

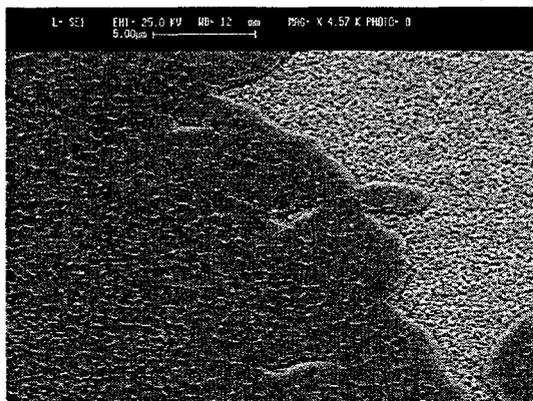


Figura 19 - Immagine SEM della zona di bordo critica per l'SLG

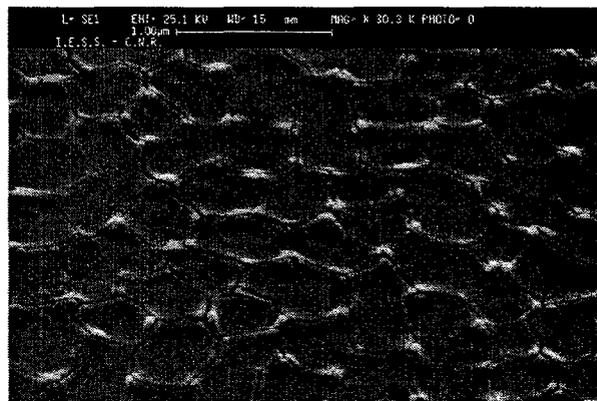


Figura 20 - Immagine SEM della zona di ricrescita che si ha lontano dall'energia critica. La distribuzione è più uniforme e più tollerante alle variazioni di fluensa del laser

Questi bordi, seguendo il principio di Huygens, si comportano come sorgenti luminose cilindriche le cui emissioni, focalizzate dalle lenti HC e VC, finiscono per interferire sul piano focale di queste ultime, coincidente con il piano d'irraggiamento. Calcolando la distanza tra i picchi delle frange di interferenza create dalle lenti si ha un periodo di $14 \mu\text{m}$ per le lenti HD + HC e di $11 \mu\text{m}$ per le lenti VD + VC, numeri compatibili con la frequenza spaziale della trama. Come controprova, sono stati fatti irraggiamenti togliendo alternativamente le lenti HD e le lenti VD, osservando la scomparsa della tessitura lungo la direzione delle lenti mancanti.

Per analizzare la distribuzione delle dimensioni dei grani abbiamo sottoposto i campioni a Secco etching e quindi ad analisi SEM. Le foto 19 e 20 illustrano i risultati che confermano quanto già visto al microscopio ottico. Dalla foto 19 risulta evidente come i grani più grandi siano quelli al confine con le regioni microcristalline (le regioni nere nelle foto a microscopio ottico). Questi possono raggiungere dimensioni ben superiori al micrometro ma in una zona molto ristretta (dell'ordine di $10\text{-}20 \mu\text{m}$ dal bordo). La foto 20 mostra qual è invece la situazione che si trova spesso allontanandosi da queste zone: vi è crescita SLG con dimensioni di grano medie dell'ordine di 500 nm su aree molto più estese.

I risultati sin qui presentati sono relativi al campione irraggiato con 20 colpi sovrapposti. L'analisi del campione ricristallizzato con 40 colpi riporta risultati simili, con l'unica differenza che ad una maggiore uniformità si affianca la presenza di zone danneggiate (vedi figura 21). La figura 22 mostra la topografia AFM della formazione di un grano SLG all'interno di una zona microcristallina, dovuto probabilmente alla presenza di un seme nel fuso, evento molto raro per queste energie.

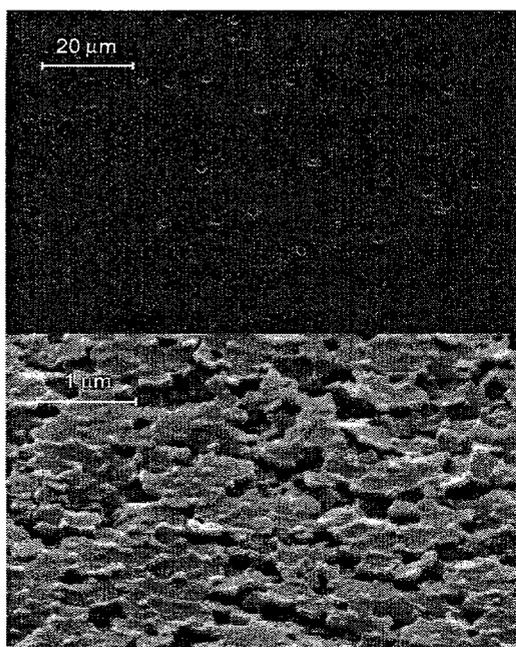


Figura 21 - Danneggiamento del film sottoposto a grande numero di colpi.

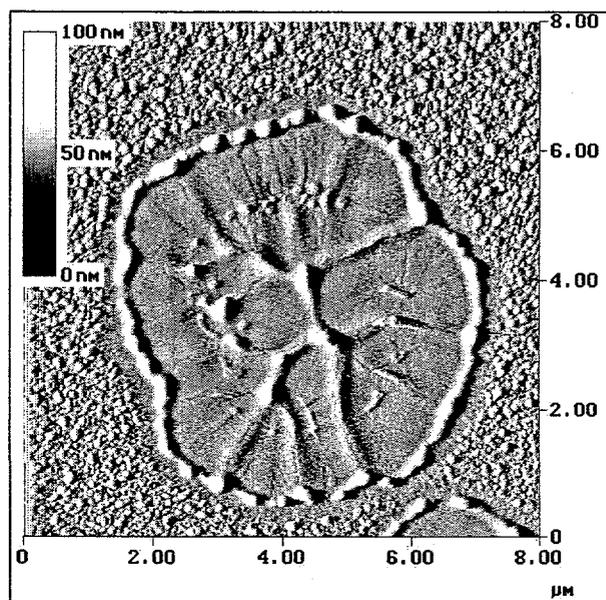


Figura 22 - Topografia AFM di un grano all'energia di soglia per la SLG

L'analisi sin qui svolta è confermata dal fatto che irraggiamenti successivi su film sottili (40 nm) ad alte densità di energia ($> 0.43 \text{ J/cm}^2$ e quindi superiori all'energia di soglia per la SLG) hanno prodotto materiale con grani di dimensioni inferiori a 10 nm uniformemente su tutta la regione irraggiata fatta eccezione per le regioni di bordo, sul lato lungo del fascio, dove si raggiunge l'energia di soglia per la formazione di strutture SLG. In figura 23 è riportata una sequenza di foto SEM ad ingrandimenti differenti della zona a bordo spot in cui vi è ricrescita SLG.

Confortati, comunque, dal fatto di aver raggiunto una condizione sperimentale in cui si erano ottenuti grani giganti, si è deciso di ricavare sperimentalmente una curva in cui correlare la dimensione dei grani alla densità di energia (che chiameremo curva G-F, grani-fluenza) per stabilire con una buona approssimazione i parametri di lavoro da adottare per il sistema definitivo da installare nel Centro ENEA di Portici e per decidere se intervenire o meno sul problema della trama.

Dal momento che non è possibile variare in modo sostanziale la fluensa del fascio laser agendo sulla tensione di scarica di Hercules, né l'omogeneizzatore possiede gradi di libertà per raggiungere tale scopo, si è deciso di non usare l'omogeneizzatore e di sfruttare il naturale profilo spaziale d'intensità del fascio laser per ottenere, con un singolo colpo, un ampio spettro di valori di energia con cui irraggiare il silicio. Dal momento che la densità media di energia del fascio in uscita da Hercules è di circa 0.2 J/cm^2 occorre, comunque, una

focalizzazione lungo uno dei due lati per ottenere una fluensa massima di almeno 0.5 J/cm^2 . Per raggiungere la densità di energia desiderata si è usata solo la lente VC (vedi figura 4), di focale 44 cm, ponendo il campione di silicio da irraggiare ad una distanza di circa 22 cm, in aria e a temperatura ambiente.

La curva G-F è stata ottenuta tramite due diverse analisi: la prima misura il profilo della densità di energia sul piano di irraggiamento del silicio lungo una linea parallela al lato lungo, e l'altra associa ai punti di tale linea la corrispondente dimensione dei cristalli. Per ottenere il profilo di fluensa è stata usata la stessa tecnica adottata nelle misure di omogeneità (slitta, fototubo con un diaframma da $50 \mu\text{m}$ di diametro, rivelatore per la normalizzazione, controllo ed acquisizione tramite computer), mentre la dimensione media dei grani è stata determinata attraverso le analisi al SEM.

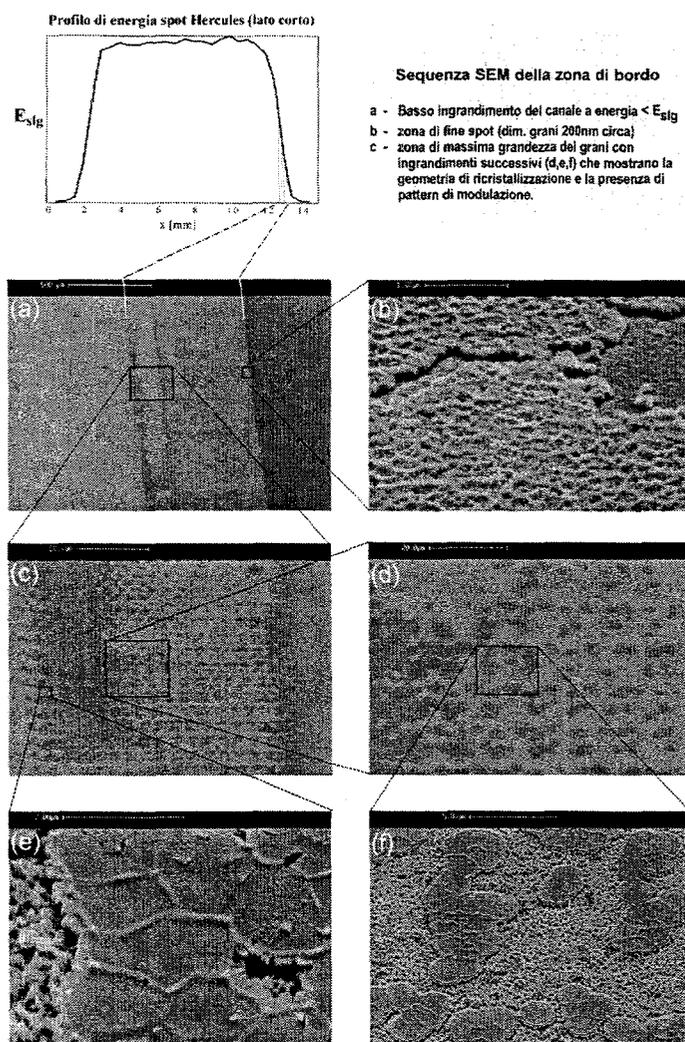


Figura 23 - Sequenza di foto SEM ad ingrandimenti differenti della zona al bordo dello spot in cui vi è ricrescita SLG.

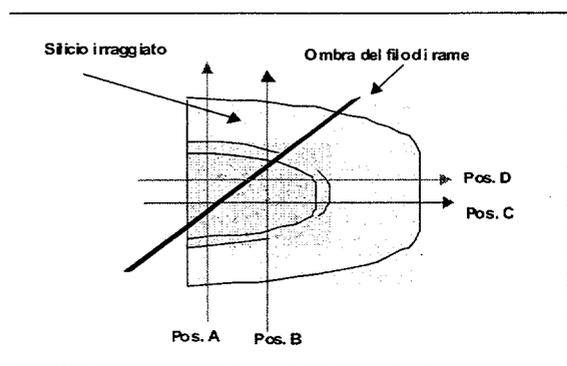


Figura 24 - Schema del silicio irraggiato per correlare grandezza dei grani con la fluenza laser

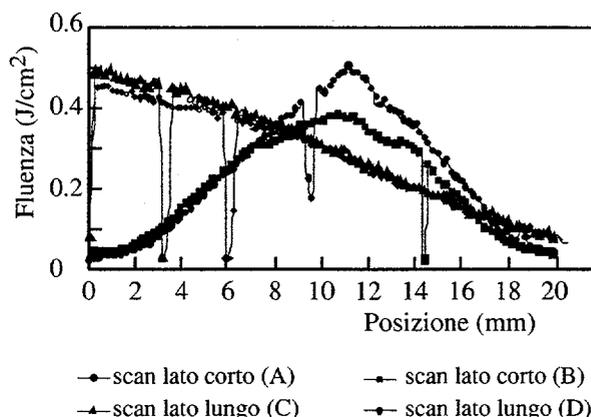


Figura 25 - Profili di fluenza per la misura della curva G-F

La correlazione tra i punti in cui è misurata la fluenza e quelli in cui è misurata la grandezza dei grani è stata ottenuta nel seguente modo. Il campione di silicio è stato irraggiato mascherando una parte del fascio laser per avere uno 'zero' comune. La scansione di energia è stata fatta partire da un punto sotto la maschera, essendo quindi lo zero rappresentato dal punto in cui il fototubo cominciava a rivelare la luce laser. In questo modo, però, l'ambiguità tra le due misure (in merito alla variabile 'posizione') non è risolta nella dimensione ortogonale a quella lungo la quale avviene la scansione di energia (circa 1 cm): lungo di essa, infatti, la densità di energia è variabile (non essendoci l'omogeneizzatore). E' quindi indispensabile utilizzare un ulteriore 'marker', oltre allo zero, per calibrare la misura. Ciò è stato fatto ponendo, appena sopra il silicio, un filo di rame obliquamente rispetto alla direzione di scansione dell'energia, così da creare una sottile ombra sul silicio irraggiato (vedi fig. 24). Durante la misura di fluenza, in corrispondenza del filo di rame si osserva un intervallo di circa 200 μm in cui l'energia è schermata dal filo stesso, la cui distanza dallo zero identifica in modo univoco la coordinata trasversa lungo cui è stata realizzata la misura.

I quattro grafici del profilo di densità di energia sono riportati nella figura 25. Due sono lungo x (dove si vede lo 'zero' dato dalla presenza della maschera) e due lungo y , utili per un'eventuale controprova sulla determinazione della soglia di energia per la liquefazione totale del silicio. La figura 26 mostra l'immagine al microscopio ottico del campione cristallizzato con fascio non omogeneizzato. Dall'immagine è evidente la ricristallizzazione graduale del campione. Su questa regione è inoltre evidenziata la linea da correlare con la misura di fluenza relativa alla posizione C di figura 25. Lungo questa linea sono state eseguite le misure SEM e AFM dalle quali sono stati estratti i dati da correlare con le energie di figura 25.

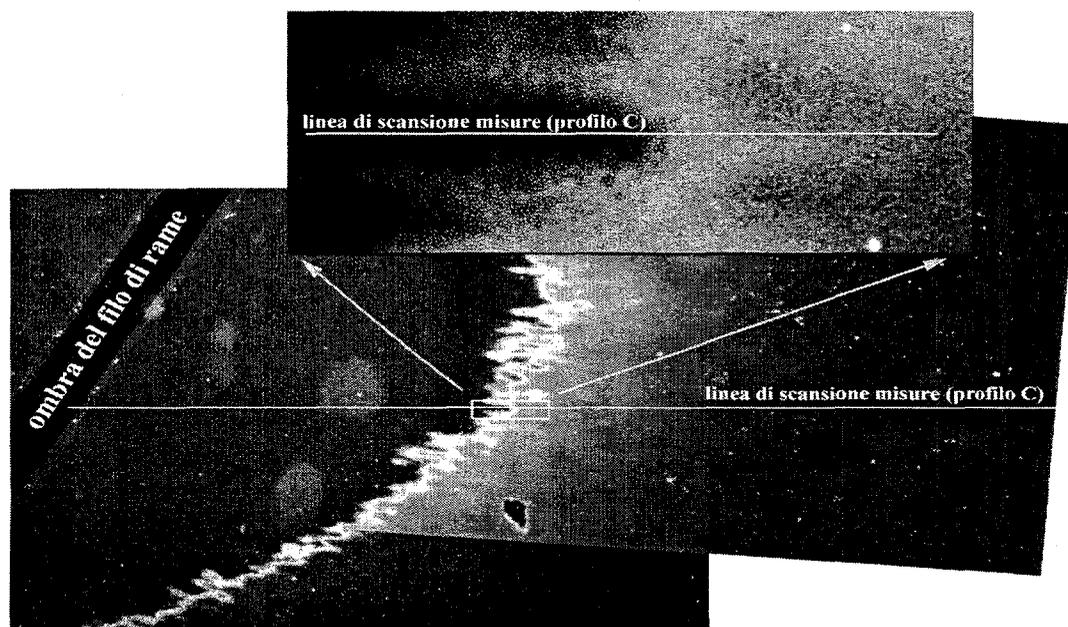


Figura 26 - Foto al microscopio ottico del campione irraggiato senza omogeneizzatore

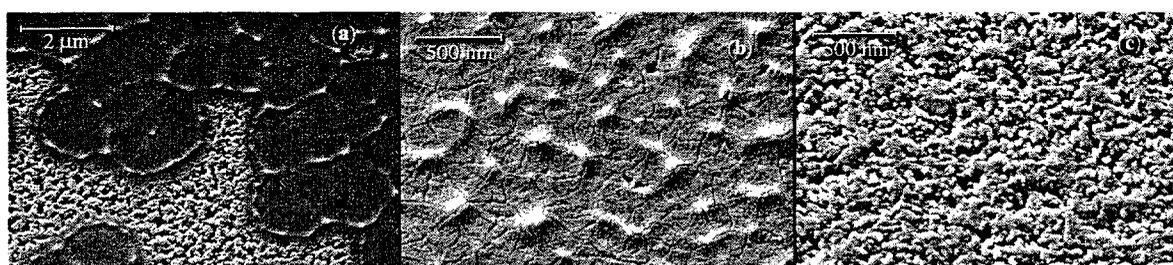


Figura 27 - Foto SEM degli andamenti tipici misurati (a) a soglia SLG (b) LG stabile (c) regione microcristallina

In particolare, nella figura 27 sono riportate le foto SEM più rappresentative dell'andamento osservato sul campione: la zona di SLG (a), la zona più estesa in cui la LG porta a grani di dimensioni stabili di 200 nm circa (b) e la zona a più bassa energia caratterizzata da crescita microcristallina (c). E' evidente che i risultati ottenuti possono essere inseriti con successo negli schemi di descrizione del processo fisico illustrati in figura 10. La misura delle dimensioni dei grani di silicio valutata da queste foto ha consentito inoltre di risalire alla curva G-F che è monotona, con una lieve pendenza sino a $F = 0.42 \text{ J/cm}^2$, quindi presenta una decisa impennata in pochi mJ/cm^2 ed infine crolla dopo aver superato la fluensa critica $F_c = 0.425 \text{ J/cm}^2$ che corrisponde al valore per cui lo spessore di silicio è totalmente ed uniformemente liquefatto.

La figura 28 mostra invece il quadro riassuntivo delle misure topografiche AFM: da queste sono stati estratti dei dati sulla rugosità della superficie. Il grafico di figura 29 mostra l'andamento della grandezza media dei grani (G-F) insieme con la rugosità (Sq) in funzione della fluensa calcolata. E' evidente come l'andamento di quest'ultima sia molto più graduale della curva G-F e rappresenti la grandezza che più realisticamente si può correlare con l'andamento della luminosità del film visibile nella foto ottica di figura 26. Il grafico di figura 30, relativo alla "piccosità" del film, mostra come questo parametro sia invece più legato all'andamento G-F e come in corrispondenza della energia critica il trasporto di massa si concentri in "pochi" picchi di grande altezza.

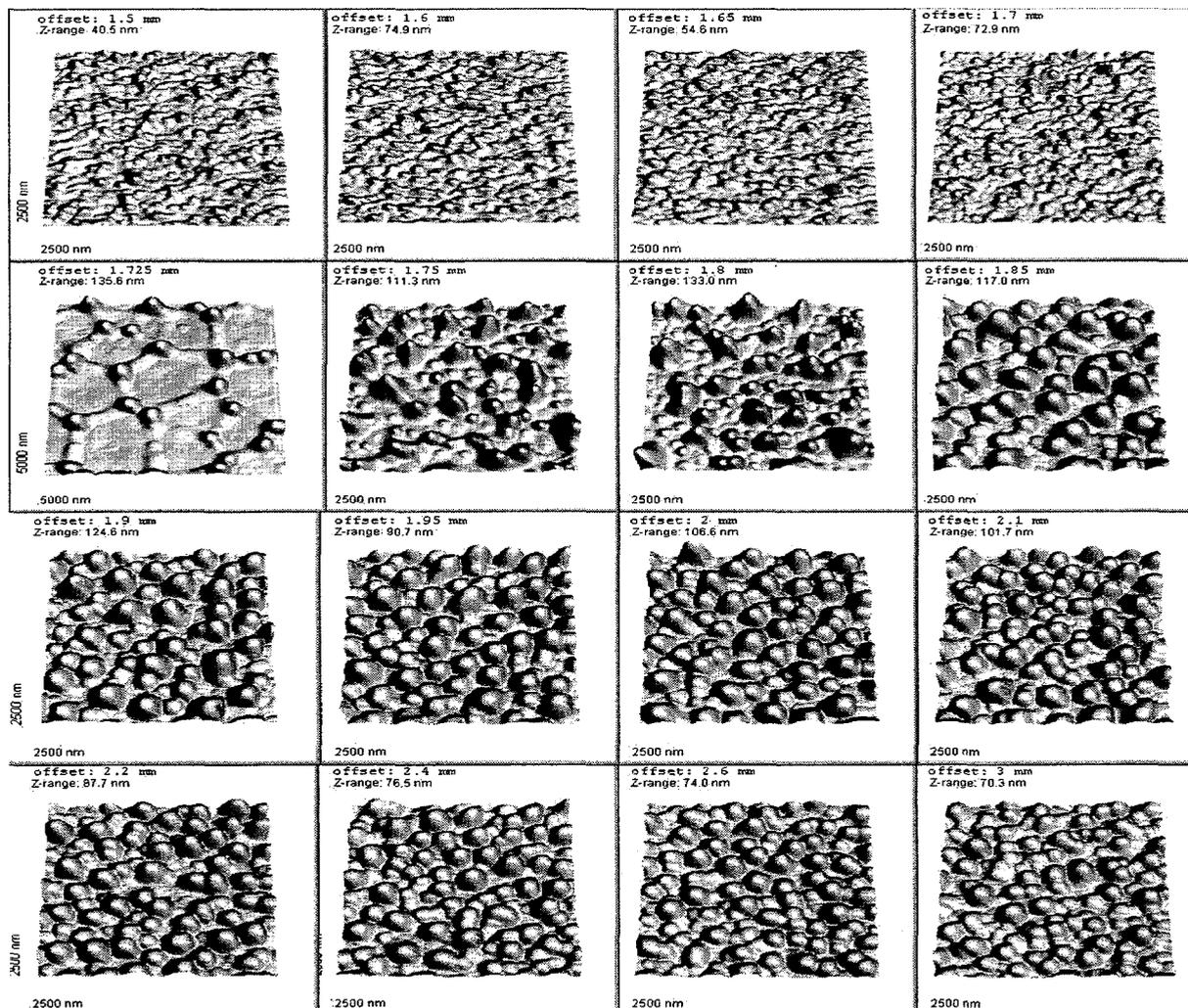


Figura 28 - Quadro riassuntivo delle misure AFM

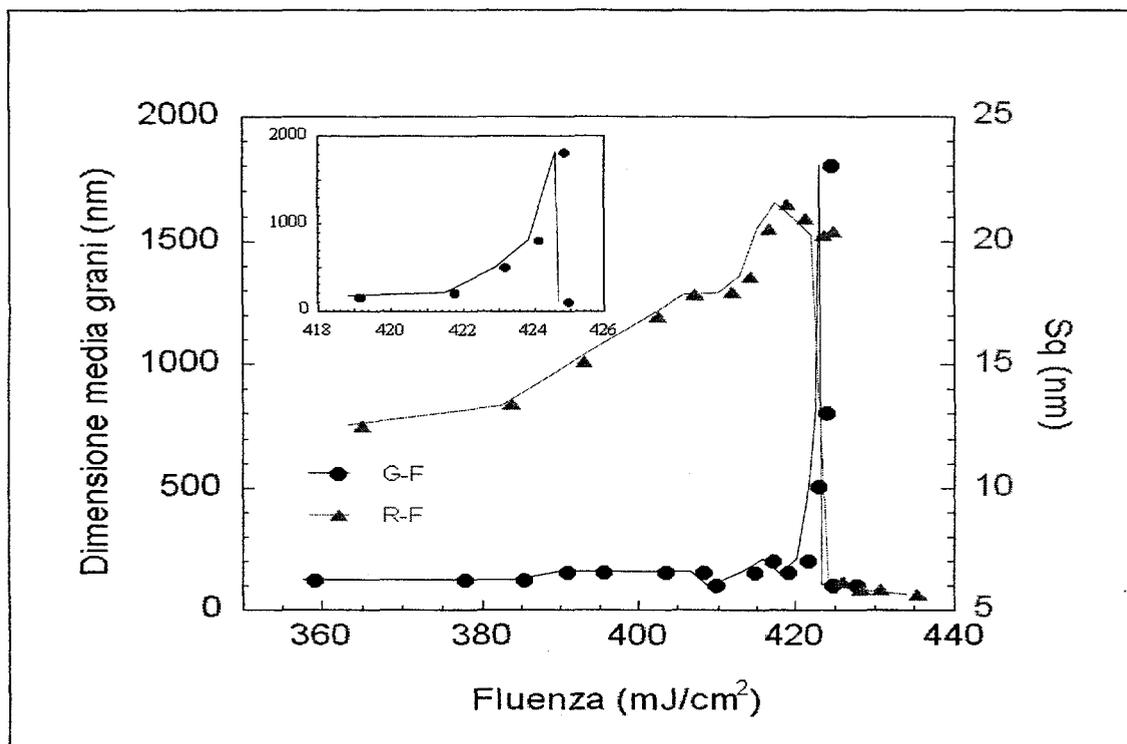


Figura 29 - Grafico della dimensione dei grani (G-F) e della rugosità (S_q) in funzione della fluensa del laser

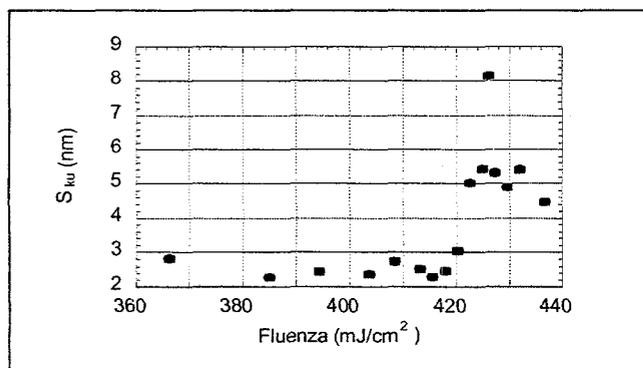


Figura 30 - Grafico della piccosità (S_{ku}) in funzione della fluensa del laser.

6. TECNICHE PER LA CRESCITA CONTROLLATA DEI GRANI GIGANTI E POSSIBILI SVILUPPI

Come si è visto nel paragrafo precedente, la finestra di densità di energia del fascio laser per ottenere la condizione SLG di cristallizzazione ottimale è estremamente stretta ($\sim 5 \text{ mJ cm}^{-2}$) e richiede quindi fasci laser spazialmente molto omogenei. Inoltre, il punto di lavoro SLG dà spesso origine a silicio policristallino con dimensioni dei grani non uniformi per la casualità della posizione dei germi di ricristallizzazione. Infatti, quando i germi sono eccessivamente

lontani tra loro nel volume di liquido che li separa può avvenire la ricristallizzazione omogenea a grana fine; quando i germi sono eccessivamente vicini tra loro, la dimensione dei grani è abbattuta in pari misura. La distribuzione non uniforme delle dimensioni dei grani si ripercuote in disuniformità nelle prestazioni dei dispositivi realizzati con tale materiale ed in complicazioni nel controllo e nella gestione dei relativi circuiti elettronici.

Per ovviare a tali inconvenienti, è stata sviluppata una tecnica per il controllo della SLG che si basa sul controllo della localizzazione e della propagazione della crescita laterale dei grani tramite un processo a due passi che consente di ottenere silicio policristallino con grani grandi, omogeneamente distribuiti su tutta l'area irraggiata [5].

6.1 Descrizione del processo

Il processo è schematicamente illustrato in figura 31. Durante il primo passo, il fascio laser che irraggia il film di silicio amorfo è modulato spazialmente tramite una maschera metallica in contatto con il campione. Al di sopra di una certa densità di energia, le zone illuminate sono completamente fuse mentre le zone mascherate rimangono amorfe (figura 31a). In questo modo al bordo tra la zona mascherata e quella irraggiata, dove è presente un'interfaccia solido liquido, si creano rapidamente dei semi cristallini (nucleazione eterogenea) che si possono espandere nelle zone fuse dando origine alla crescita laterale dei grani (figura 31b). Alla fine del primo irraggiamento (figura 31c) il campione è formato da regioni con grani grandi ed orientati (zone irraggiate) e regioni di silicio amorfo (zone mascherate). Per ottenere la ricristallizzazione completa il film può essere irraggiato nuovamente senza l'uso della maschera (figura 31d). Poiché le temperature di fusione del silicio amorfo e del silicio cristallino differiscono di circa 270 gradi (~1420 K dell'amorfo contro 1687 K del cristallino), esiste un intervallo di energie del laser per cui è possibile fondere completamente le regioni rimaste amorfe mentre le zone policristalline sono fuse solo parzialmente. In questo modo i grani parzialmente fusi agiscono come semi e si possono propagare durante la ricrescita nelle zone completamente fuse fino a ricoprire tutto il film (figura 31e).

La finestra di energie utili per il secondo passo (E_w) può essere stimata dal calcolo della profondità di fusione per film amorfo o policristallino, mediante un programma di calcolo numerico, come mostrato in figura 32. Per il laser a XeCl Lambda Physik LPX205 dell'IESS (durata a metà altezza = 30 ns) e per un film spesso 80 nm le energie utili sono comprese tra 0.32 e 0.46 J/cm².

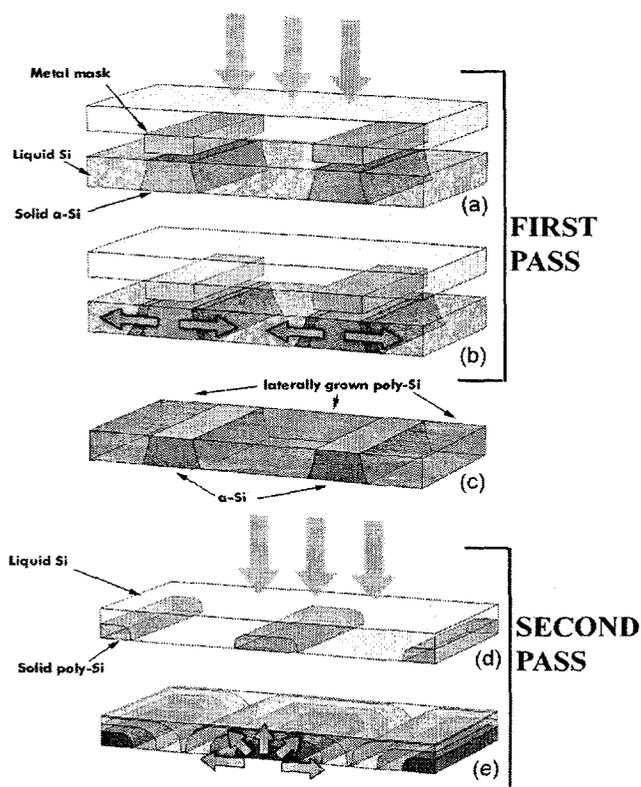


Figura 31 - Illustrazione schematica del processo di cristallizzazione laser a due passi

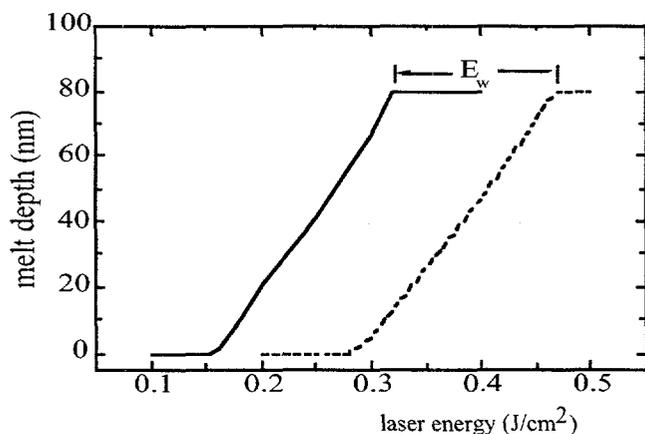


Figura 32 - Profondità di fusione al variare dell'energia del laser per un film di silicio amorfo (linea continua) e cristallino (linea tratteggiata). L'intervallo di energia utile per il secondo passo è $E_w \sim 140 \text{ mJ/cm}^2$.

6.2 La maschera per il primo passo

La maschera è composta da zone in grado di trasmettere la radiazione laser alternate da zone in grado di bloccare la radiazione attraverso strati idonei all'assorbimento e/o riflessione della radiazione UV. Per ottenere un'efficiente trasmissione della radiazione laser nelle zone trasparenti, il supporto della maschera deve essere in quarzo o materiali non assorbenti

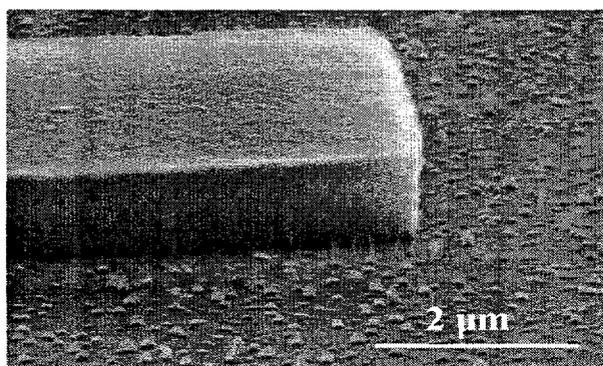


Figura 33 - Foto SEM di un elemento assorbente/riflettente della maschera usata durante il primo passo di irraggiamento

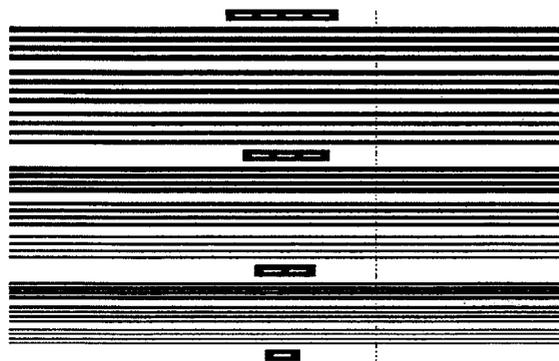


Figura 34 - Disegno della struttura base della maschera. La struttura è replicata su tutta la maschera durante la scrittura con EBL

nell'UV. Gli elementi assorbitori sono formati da un multistrato Cr (20 nm)/Nb (1 μm)/Cr (20 nm) depositato su quarzo con spessori relativi indicati in parentesi. Tale struttura è stata scelta in quanto il Cr presenta un'elevata riflettività a 308 nm (emissione XeCl) pari al 65% ed un punto di fusione relativamente elevato (1857 °C). Tuttavia, il Cr non risulta facilmente definibile in modo anisotropico (con pareti laterali verticali) e pertanto il "corpo" dell'assorbitore è stato realizzato in Nb, metallo che ha una riflettività nell'UV non molto elevata (43% a 308 nm) ma possiede un'elevata temperatura di fusione (2468 °C) e la possibilità di essere definibile in modo anisotropico attraverso il Reactive Ion Etching. Allo scopo di meglio definire le strutture della maschera, questa è stata realizzata tramite l'apparecchiatura di Electron Beam Lithography (EBL) presso i laboratori IESS-CNR. Nella figura 33 è illustrata una foto ottenuta con il microscopio a scansione di una struttura tipica dalla quale è possibile osservare la verticalità delle pareti di Nb ottenute con il processo sopra descritto. Nella figura 34 è mostrato il disegno della maschera dal quale si possono notare le strutture degli assorbitori (linee) intercalate da spazi. In particolare, la maschera realizzata contiene varie combinazioni di spazi pieni (assorbitori) e vuoti con dimensioni laterali variabili da 1 a 6 μm.

6.3 Risultati dopo il primo passo di irraggiamento

Il metodo proposto è stato applicato per la ricristallizzazione di un film di silicio amorfo dello spessore di 80 nm tramite il laser Lambda Physik LPX205 presso l'IESS. Le figure 35a e 36a mostrano foto SEM di un campione (sottoposto a Secco-etch) dopo il primo passo di irraggiamento, effettuato a temperatura ambiente, per due differenti spaziature tra elementi adiacenti della maschera. Si può notare che si sono formate due strisce di grani allineate parallelamente alla direzione di propagazione e adiacenti al limite della regione non mascherata. In particolare, in figura 35a, poiché la distanza tra le zone mascherate è di 2.5 μm, le due strisce si congiungono al centro della zona irraggiata originando una struttura con

un solo bordo di grano perpendicolare alla direzione di crescita laterale. Se la distanza invece è abbastanza grande ($3.5 \mu\text{m}$ in figura 36a), la struttura consiste in due strisce di polisilicio separate da una regione centrale caratterizzata da grani molto piccoli (rimosso dal Secco-etch) generati per nucleazione omogenea. Variando la densità di energia laser (E_l) si trova che la massima estensione dei grani aumenta con la densità di energia da circa $1 \mu\text{m}$ per E_l appena sopra la soglia di fusione completa del film amorfo ($\sim 0.29 \text{ J/cm}^2$) fino a $1.6 \mu\text{m}$ per $E_l = 0.44 \text{ J/cm}^2$. Inoltre, la dimensione dei grani aumenta irraggiando il film a più alta temperatura, come mostrato in figura 37 per un campione irraggiato a $450 \text{ }^\circ\text{C}$ ed $E_l = 0.34 \text{ J/cm}^2$. In questo caso si sono ottenuti grani con estensione laterale dell'ordine di $2 \mu\text{m}$.

L'analisi della superficie del film dopo il primo irraggiamento (effettuata tramite AFM) mostra che la crescita laterale dei grani è accompagnata da trasporto di massa (figura 35b e 36b), come già osservato nel caso dell'SLG. Questo fenomeno produce due depressioni, rispetto al piano del film amorfo, di circa 10 nm vicino ai limiti della zona irraggiata (figura 35c e 36c), dove inizia la crescita laterale. Nella regione centrale della zona, dove i due fronti di solidificazione si incontrano (figura 35c) o dove gli stessi fronti incontrano la zona già ricristallizzata tramite nucleazione omogenea (figura 36c), si produce un rilievo di circa 80 nm . Si può inoltre notare l'assenza di rilievi in corrispondenza dei bordi di grano paralleli alla direzione di crescita laterale, che indica che non c'è trasporto di massa in questa direzione.

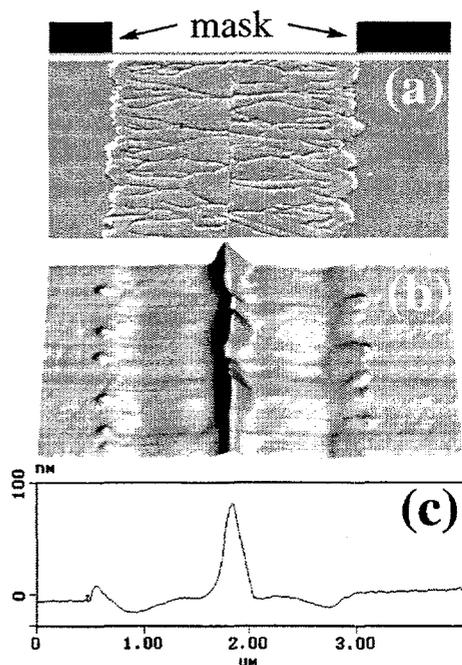


Figura 35 - Foto SEM (dopo Secco-etch) (a), immagine AFM della superficie (b) e relativa sezione (c) di un film dopo il primo passo di irraggiamento ($E_l=400 \text{ mJ/cm}^2$), con zona irraggiata larga $2.5 \mu\text{m}$

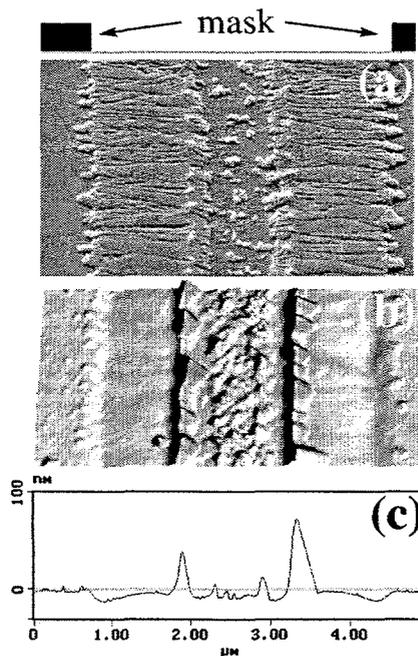


Figura 36 - Foto SEM (dopo Secco-etch) (a), immagine AFM della superficie (b) e relativa sezione (c) di un film dopo il primo passo di irraggiamento ($E_l=400 \text{ mJ/cm}^2$), con zona irraggiata larga $3.5 \mu\text{m}$

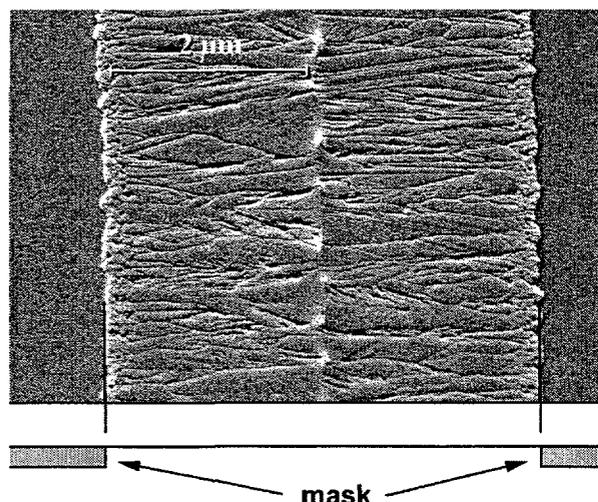


Figura 37 - Foto SEM (dopo Secco-etch) di un film dopo il primo passo di irraggiamento effettuato a $E_i=340 \text{ mJ/cm}^2$ e $T=450 \text{ }^\circ\text{C}$, con zona irraggiata larga $4.5 \text{ }\mu\text{m}$.

6.4 Risultati dopo il secondo passo di irraggiamento

Il secondo passo di irraggiamento permette di ricristallizzare l'intera area del campione, come mostrato in figura 38. In particolare la figura mostra che i grani formati durante il primo passo agiscono da semi per la successiva ricrescita estendendosi nelle zone rimaste amorfe, confermando la validità del meccanismo alla base della tecnica proposta. La struttura finale del film è formata da strisce di grani allineati lunghi circa $2 \text{ }\mu\text{m}$, corrispondente al semiperiodo della maschera nella zona mostrata in figura 38. La crescita laterale ottenuta durante il secondo irraggiamento a temperatura ambiente è dell'ordine di $(0.7-0.8) \text{ }\mu\text{m}$, mentre alla temperatura di $450 \text{ }^\circ\text{C}$ la crescita laterale è di $(0.9-1) \text{ }\mu\text{m}$. Tenendo conto delle crescite durante i due passi, l'intera superficie di un film può essere coperta da polisilicio con grani orientati utilizzando, una maschera con linee di larghezza di $1.5 \text{ }\mu\text{m}$ separate da $2.5 \text{ }\mu\text{m}$, per irraggiamenti a temperatura ambiente, mentre a $450 \text{ }^\circ\text{C}$ è sufficiente una geometria linee/spazi di $2/4.5 \text{ }\mu\text{m}$. L'analisi della superficie del film dopo il secondo passo (figura 39a), mostra che la fusione parziale delle zone policristalline durante il secondo irraggiamento permette di ridurre il rilievo della zona centrale delle strisce, producendo però rilievi meno accentuati in corrispondenza dei bordi di grani che rimanevano piatti dopo il primo passo. Inoltre, la figura mostra che le zone sottoposte solo al secondo irraggiamento presentano anch'esse il tipico rilievo prodotto dal trasporto di massa (in questo caso l'altezza è di circa 60 nm). Per ridurre la rugosità superficiale del film si può effettuare più di un irraggiamento durante il secondo passo. Come si osserva in figura 39b, questo riduce sia i rilievi sia la rugosità RMS, che passa da 13 nm per un secondo passo a singolo irraggiamento a 9 nm nel caso di cinque irraggiamenti.

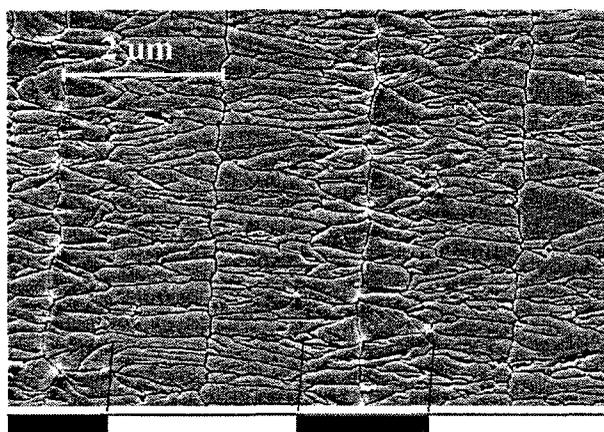


Figura 38 - Foto SEM (dopo Secco-etch) di un film dopo il secondo passo di irraggiamento effettuato a $E_i=360 \text{ mJ/cm}^2$ e $T=20 \text{ }^\circ\text{C}$, con una geometria linee/spazi $1.5/2.5 \text{ }\mu\text{m}$. E' anche mostrata la posizione della maschera durante il primo passo, effettuato a $E_i=400 \text{ mJ/cm}^2$.

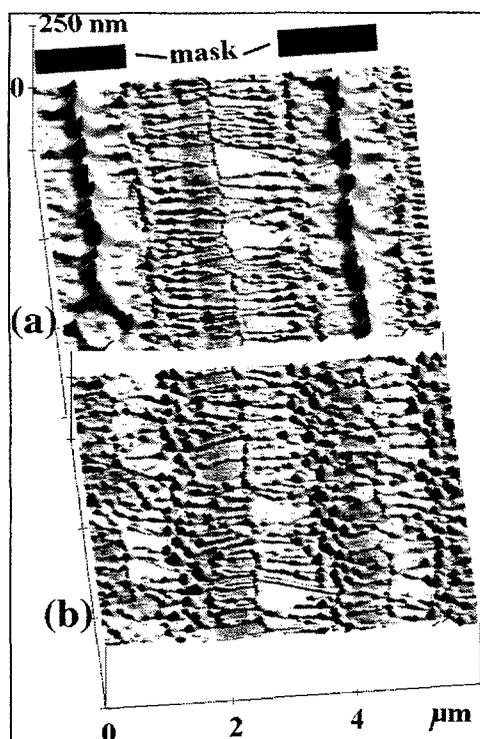


Figura 39 - Immagine AFM della superficie di un campione dopo il secondo passo di irraggiamento effettuato con colpo singolo (a) e con 5 colpi laser (b) ($E_i=360 \text{ mJ/cm}^2$ e $T=20 \text{ }^\circ\text{C}$). E' anche mostrata la posizione della maschera durante il primo passo, effettuato a $E_i=400 \text{ mJ/cm}^2$.

6.5 Primo passo effettuato con Hercules

L'influenza della lunghezza dell'impulso laser sulla crescita laterale dei grani è stata studiata confrontando i risultati del primo passo effettuato con il laser Lambda Physik (durata dell'impulso = 30 ns) e con il laser Hercules (durata dell'impulso = 160 ns, vedi figura 2). Sono stati irraggiati a temperatura ambiente film di silicio amorfo di spessori di 40 nm e 25 nm, in modo di ottenere anche con Hercules la fusione completa del film non mascherato. I risultati mostrano che la crescita laterale aumenta sia con lo spessore che con la durata dell'impulso (figura 40) ed in particolare si ottengono con Hercules grani di circa $2 \text{ }\mu\text{m}$ già a temperatura ambiente e con spessore di 40 nm (figura 41). Questi risultati possono essere

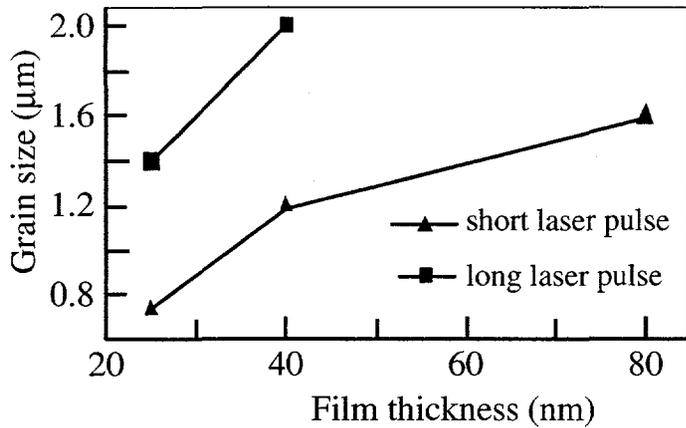


Figura 40 - Massima crescita laterale dei grani, dopo il primo passo, per film di diverso spessore irraggiati con laser Lambda Physik (triangoli) e con Hercules (quadrati).

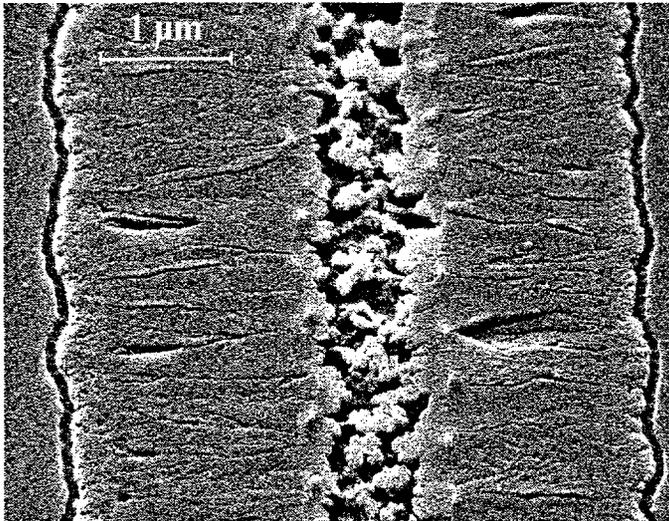


Figura 41 - Foto SEM (dopo Secco-etch) di un film spesso 40 nm dopo il primo passo di irraggiamento effettuato a $E_f=340$ mJ/cm² e $T=20$ °C con il laser Hercules.

spiegati considerando che il tempo a disposizione dei grani per la crescita laterale è limitato dal tempo in cui si produce la nucleazione omogenea nella regione centrale delle zone irraggiate. Films più spessi ed impulsi di più lunga durata ritardano la nucleazione omogenea permettendo una crescita maggiore dei grani.

7. CONCLUSIONI

Dall'analisi della curva dimensione dei grani vs. fluensa laser si possono trarre le seguenti conclusioni per quanto concerne le condizioni ottimali di cristallizzazione a colpo singolo mediante il laser Hercules L a ENEA Portici.

- Come già noto in letteratura, il regime per l'ottenimento di grani con dimensioni massime (SLG) risulta essere caratterizzato da una finestra utile di densità di energia laser

particolarmente stretta. In particolare, nel caso illustrato in Fig. 29 la finestra di densità di energia (ΔE) è di soli 5 mJ/cm^2 , pari ad una $\Delta E/E_{\text{SLG}} \approx 1.3\%$. Pertanto, per cristallizzare uniformemente in regime di SLG campioni di larga area sarebbe necessario controllare la densità di energia al meglio dell'1%. Attualmente un controllo così fine della densità di energia è precluso sia dai problemi di riproducibilità dell'energia emessa dal laser da impulso a impulso che da quelli connessi alla distribuzione spaziale di energia prodotta dal presente omogeneizzatore di fascio. Pertanto, sebbene il regime di SLG sia quello più appetibile per la formazione di grani di grandi dimensioni, risulta sconsigliabile per la criticità delle condizioni di irraggiamento.

- Sempre riferendosi ai dati mostrati in figura 29, appare interessante viceversa la zona tra 0.38 e 0.41 J/cm^2 , in quanto la dimensione media dei grani ($\sim 200 \text{ nm}$) appare essere poco sensibile in questa regione alle variazioni della densità di energia. Sebbene la finestra di energia (circa 9%) sia un po' più ampia che per il regime di SLG, è tuttavia vicina al limite delle attuali condizioni d'irraggiamento e quindi sarebbe consigliabile l'adozione di un diverso omogeneizzatore che produca una distribuzione di energia laser ancora più uniforme sul campione.

I problemi sopra esposti relativi al processo di irraggiamento dei campioni a "colpo singolo" possono essere parzialmente risolti dall'introduzione di sistemi per il controllo della crescita laterale, come quello proposto al paragrafo 6 e basato su due passi di irraggiamento. I vantaggi della tecnica proposta possono essere così riassunti:

- finestre di densità di energia relativamente ampie per i due passi di irraggiamento;
- numero contenuto (3 - 5) di colpi per punto;
- non sono richiesti processi aggiuntivi (la deposizione di overlayer, ecc.) come in altre tecniche per il controllo della crescita laterale;
- controllabilità dell'allineamento dei grani, ottenuto attraverso opportuna geometria della maschera utilizzata durante il primo passo di irraggiamento, consentendo la fabbricazione di TFT a poly-Si con un numero limitato di bordi di grano perpendicolari al flusso di corrente.

Va inoltre rilevato che l'estensione della crescita laterale aumenta con la durata dell'impulso laser, come dimostrato nella figura 40. Pertanto, l'utilizzo di Hercules L (impulso di durata sino a 150 ns) appare particolarmente adatto alla tecnica di crescita laterale proposta, consentendo la possibilità di produrre grani con estensione di $2 \mu\text{m}$ in film con spessore di 40

nm, a fronte di un'estensione dei grani di 1.2 μm ottenuta sugli stessi film irraggiati con un laser di tipo commerciale con durata dell'impulso di 30 ns.

Per quanto concerne i problemi legati al profilo di intensità non perfettamente flat-top del fascio laser eccimero, abbiamo verificato che essi sono legati a due aspetti:

- A) effetti interferenziali dei bordi delle lenti dell'omogeneizzatore (vedi paragrafo 5)
- B) la rigidità delle caratteristiche dell' omogeneizzatore.

La soluzione del problema A) passa per due elementi distinti: da una parte la riduzione dell'effetto di interferenza e dall'altra la scelta del punto di lavoro in una zona in cui il silicio non amplifichi le residue fluttuazioni laser di natura interferenziale. Per il problema interferenza, la situazione tenderà a migliorare con Hercules L grazie alla minore coerenza spaziale dell'impulso laser rispetto a quella di Hercules. Infatti, la maggiore pressione della miscela laser di Hercules L consentirà di aumentare il guadagno laser e quindi il numero di modi di oscillazione che supereranno la soglia per l'emissione laser rispetto a Hercules. Di conseguenza, ci aspettiamo che la coerenza spaziale diminuisca a parità di altre condizioni (dimensioni del mezzo attivo, densità di potenza di pompaggio) con una riduzione della visibilità delle frange di interferenza che generano la trama visibile nella figura 18. Un ulteriore miglioramento potrà venire da un opportuno sistema di filtraggio spaziale selettivo delle zone ai bordi delle lenti da cui si origina l'effetto di interferenza, attualmente allo studio nell'ambito di un deposito brevettuale. Per quanto riguarda la riduzione dell'effetto "amplificatore" del silicio delle fluttuazioni di intensità laser (incluse quelle interferenziali), è chiaro che lavorando nella zona tra 0.38 e 0.41 J/cm^2 (lontano dalla zona SLG) la visibilità delle frange diminuirà drasticamente a parità di fluttuazioni di intensità.

Il problema B) può essere risolto con un nuovo omogeneizzatore (in fase di progettazione) che tenga conto delle conoscenze acquisite dai risultati sperimentali riassunti in questa Nota Tecnica, in modo da consentire una certa versatilità riguardo la variazione della densità di energia ottimale al mutare delle condizioni sperimentali (spessore film, tecnica SLG a uno o due passi, etc.) descritte in precedenza.

BIBLIOGRAFIA

- [1] D. Della Sala, C. Privato, P. Di Lazzaro, G. Fortunato: "Microelettronica gigante", *Energia, Ambiente Innovazione* **4**, 52 (1999).
- [2] D. Della Sala et al.: "Progetto FOTO. Relazione annuale 1998" Rapporto Interno ENEA.
- [3] P. Di Lazzaro: "Hercules, an XeCl laser facility for high-intensity irradiation experiments" Proc. 2nd GR-I Int. Conf. on New Lasers, Technologies and Applications, A. Carabelas, P. Di Lazzaro, A. Torre, G. Baldacchini Eds., SPIE vol. 3423 (1998) pp. 35 – 43;
- T. Letardi, A. Baldesi, S. Bollanti, F. Bonfigli, P. Di Lazzaro, F. Flora, G. Giordano, D. Murra, G. Schina, C.E. Zheng: " Industrial large aperture XeCl laser for surface processing" *Advanced High-Power Lasers in Manufacturing*, M. Osinski, H. Powell, K. Toyoda Eds. SPIE vol. 3888 (1999) pp. 587-597
- [4] M. Born, E. Wolf: *Principles of Optics* (Pergamon Press, VI Edition 1993) pp. 508 – 522.
- [5] L. Mariucci, R. Carluccio, A. Pecora, V. Foglietti, G. Fortunato, D. Della Sala: "A novel two-pass excimer laser crystallisation process to obtain homogeneous large grain polysilicon" *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, L907 (1999).

Edito dall' **ENEA**
Unità Comunicazione e Informazione
Lungotevere Grande Ammiraglio Thaon di Revel, 76 - 00196 Roma
Stampa: Centro Stampa Tecnografico - C. R. Frascati

Indirizzo Internet: www.enea.it

Finito di stampare nel mese di ottobre 2000