

非晶硅膜爆发结晶中的螺线形成机理

陈 治 明

(中国科学院半导体研究所)

1985年1月28日收到

某些非晶硅薄膜在弧光诱发的晶化过程中有时会在其辐射状晶区形成多种形状的螺线。这些螺线是生长中的晶体与爆发结晶过程中的热漏等阻遏机构相互作用的结果。阻遏机构的存在通常与这些薄膜的不均匀性有关。

一、引言

吸收材料的辐照加工方法已在半导体研究领域中受到广泛重视。虽然大多数研究工作的重点在于以此手段消除单晶材料离子注入层的晶格损伤，但其最大潜力可能还在于通过非晶薄膜的快速辐照晶化，获得以玻璃或其他非晶材料为衬底的结晶薄膜，为非晶半导体材料开拓更为广阔的应用前景。在此方面，辐照加工有高温退火所永不可及的长处^[1,2]。

非晶硅膜的辐照晶化，可用激光技术^[3,4]或等离子体电弧放电技术^[5]来实现。后者利用稀薄的空气-氩气混合物被强电场(~ 1 万伏/平方厘米)击穿时所产生的非相干白光脉冲闪灼非晶样品。由于这种方法可使大面积样品在微秒级的短时间内实现晶化，无须进行辅助加热即可获得毫米级的大尺度晶粒，而使用的设备却很简单，因此有希望成为一种低成本的多晶硅制备技术。

视样品吸收光能密度的大小，弧光诱发晶化导致两类不同的结晶特征：粒状结晶和辐射状结晶^[6]。辐射状结晶区通常具有十分明显的沃龙诺依多边形特征，整个晶区只有笔直的辐射线和沃龙诺依边界线^[2]。但是对于某些样品，在辐射状晶区往往还会观察到多种形状的螺线，同时伴随着沃龙诺依多边形特征的扭曲。本文着重分析这些螺线的形成原因及过程，从爆发晶化的基本原理出发，强调热漏等结晶生长过程中的阻遏机构在螺线形成过程中的重要作用。

二、实验结果

所有实验样品都是淀积在玻璃或石英衬底上的非晶硅膜，厚度在 $1\mu\text{m}$ 以下。非晶硅膜的淀积，使用了电子束蒸发法($T_s \sim$ 室温)，射频辉光放电法($T_s \sim 200-300^\circ\text{C}$)和LPCVD法($T_s \sim 580^\circ\text{C}$)。用以产生非相干白光脉冲的电弧放电装置与文献[5]中所描述者大体相同。在适当的放电条件下，一次弧光的闪灼即足以实现晶化。这时样品由暗褐

色(蒸发和 LPCVD 样品)或暗红色(辉光放电样品)变成相当透明的黄色。X 射线衍射法证明这些浅色区为基本上无显著优先取向的多晶体^[6]。

视入射样品光能密度的差异,结晶可能呈粒状,也可能呈辐射状。粒状区晶核密集,布满了应力裂纹^[6],有明显的熔体结晶迹象。粒状结晶经常出现在样品离电弧最近的部位,对应于较高的光能密度。辐射状晶区的基本特征是晶核分布稀疏可数。若一个晶核的生长在猝灭之前不与任何邻近晶核的生长前沿碰头,正常情况下将生成一个孤立的圆形晶斑。这对应于临界的光能密度。在光能密度适中的时候,一个晶核可以持续生长到与相邻晶核的生长前沿碰头为止。对于各向均匀的样品,由于晶核同时开始并以相同速率生长,结晶前沿的碰头线必然是这两个晶核连线的垂直平分线。这些垂直平分线构成规则的沃龙诺依多边形^[2]。但是,对于某些样品,主要是没有加热史的蒸发样品,沃龙诺依晶界及晶斑的 c-a (晶体) (非晶体) 边界常因各种形状螺线的出现而被扭曲,如图 1 所示(见图版 I)。这些螺线可能完全是、也可能只有局部是 c-a 边界,或其两侧都是晶体。螺线两侧的结晶可能属于同一晶核,如图 1(a) 完整晶斑中的螺线;也可能属于不同的晶核,如图 1(b) 中箭头所指。但是,不管是哪一种情形,螺线两侧的结晶过程都不是在同一时刻完成的。这是螺线与沃龙诺依边界(图中标 T 者)本质上不同的地方。即便是那些两侧都已完全晶化的螺线,其本身却可能仍是非晶。螺线还常常导致同一辐射结构内的准沃龙诺依边界,如图中记 X 者。通过观察很容易发现,螺线是晶化过程中 c 区和 a 区的非正常边界按时间的累积。所谓非正常边界,是指晶化过程中 a-c 相变的提前猝灭边界。螺线容易在样品的边沿出现。在同一晶核的辐射结构中,螺线可能在晶核附近,也大量出现在结构的边沿。晶核附近的螺线一般具有较好的对称性和较大的曲率。结构边沿的螺线曲率较小,螺线特征也往往不够明显,其实是一些不完整的螺线。

还没有在粒状晶区中发现任何形式的螺线,即便是样品边沿的粒状晶区。

三、讨 论

光致晶化中使用弧光和使用激光的主要差别之一在于:弧光加热整个样品,而激光只加热一个小点。为在激光晶化中充分利用爆发晶化的特点实现大尺寸结晶,必须预热薄膜至某个临界温度 T_c 以上。但在弧光晶化中,由于整个样品都在同一时刻经受了辐照,获得与预加热近似的温度效果。如果这时的光能密度还不至于强到使整个区域的温度升至薄膜熔化的温度 T_m , 粒状晶化当不致发生。但是,薄膜中一些由于杂质或结构缺陷造成的强吸收点,则会因为对辐照的高度响应而具有较高的温度,形成一个个孤立的,较为分散的“热点”,加上它们本身具有较高的自由能,稳定性较差,从而开始了爆发晶化的成核和早期生长。由于爆发晶化是靠结晶潜热的释放来维持生长过程的进行,因而潜热在结晶前沿的释放、传播和吸收,对结晶的生长方向起着决定的作用。对于一个均匀性较差的样品,其间可能随机分布着一些在晶化时只能释放较少潜热的低自由能区,或者 a-c 相变温度较高的难晶化区以及散热较快的热漏等。这些缺陷将成为结晶生长过程的阻遏机构。在爆发晶化进行的过程中,不管是在“热点”(晶核)附近还是有一定距离的地方,与阻遏机构遭遇的那个方向上的晶化将会突然猝灭,而相邻辐射方向上的结晶过

程仍在继续进行,且有在保持原方向生长的同时向猝灭区扩张的趋势。一旦结晶前沿越过阻遏机构,与这阻遏机构紧邻的一条结晶辐射线就会向旁边的未晶化区派生出一条新的边沿辐射线。边沿辐射线会不断派生,直到阻遏机构造成的这片未晶化区也被完全晶化,或者由于样品的背景温度降低等原因而停止。派生点的轨迹即形成螺线。螺线的形状决定于派生角 θ (派生线与边沿辐射线的夹角)及派生速率 v 的大小。由这两个参数决定螺线形状的三种典型情况如图2所示。图2(a)表示派生速率和派生角皆为时间的常数的情形,几何学可以证明这将形成一个圆(假定生长速率保持不变)。这是一种实际中不常

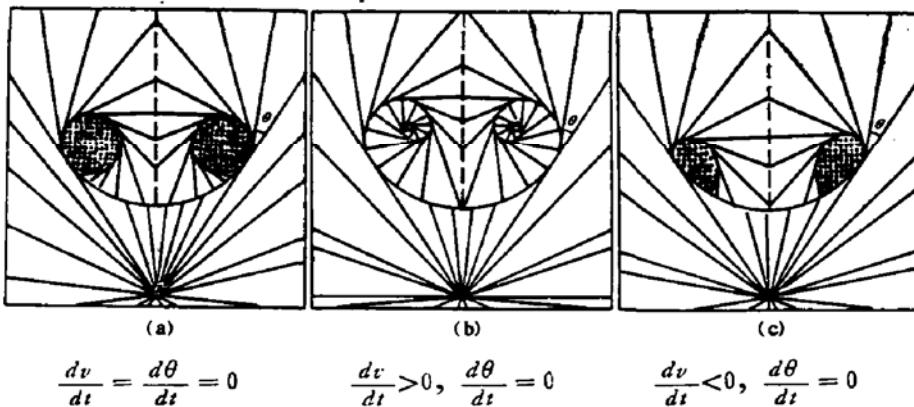


图2 三种螺线特征

见的理想情形。实际情形中两参数多为时间的函数。图2(b)和(c)分别为 θ 保持不变而派生速率随时间增加和减少的情形。事实上, v 随时间的增加也往往伴随有 θ 的增大,这经常发生在结晶过程的初期,即“热点”附近存在阻遏机构时。一个局部的阻遏机构在猝灭了由其正面来的结晶过程之后,不一定能够再对其两侧的派生晶化自背面而来的推进起阻遏作用,因为这时它是处在高温区的包围之中。结晶过程中的提前猝灭区最终是否能被从两侧绕进来的派生晶化填满,这取决于阻遏机构的大小以及扩张前沿的温度高低。对于较小的阻遏机构及高温度情形,派生速率高、角度大,所形成的螺线的曲率也就大,完全晶化的可能性相应增大;反之则派生速率低,派生角小。特别是在结晶末期,派生速率和派生角还随时间减小,螺线的曲率也就越来越小,派生及生长都被很快猝灭,留下未完成的非晶区。这时,螺线的全部或局部成为a-c边界。这些螺线往往不够完整,缺乏明显的螺旋特征。完整的、富于特征的螺线一般出现在结晶起源的“热点”附近。

螺线提供了与晶化过程有关的信息,将有助于对爆发结晶的动力学问题进行较深入的研究。

参 考 文 献

- [1] J. T. Lue and C. L. Chao, *J. Appl. Phys.*, **53**, 984 (1982).
- [2] Z. M. Chen, S. K. Wong, P. K. John, A. Prasad and B. Y. Tong, *Canadian J. Phys.*, **63**, 719 (1985).
- [3] J. C. C. Fan, H. J. Zeiger, R. P. Gale and R. L. Chapman, *Appl. Phys. Lett.*, **36**, 158, (1980).
- [4] S. Kawamura, J. Sakurai, M. Nakano and M. takagi, *Appl. Phys. Lett.*, **40**, 394(1982).
- [5] K. Ebihara, P. K. John, B. Y. Tong, S. K. Wong and K. P. Chik, in “Materials and New Processing Technologies for Photovoltaics” p. 488, The Electrochemical Society, (1982).
- [6] Z. M. Chen, K. Ebihara, P. K. John, B. Y. Tong and S. K. Wong, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **23**, L761 (1984).

Formation Mechanism of the Spirals in the Explosive Crystallization of Amorphous Silicon Films

Chen Zhiming

(Institute of Semiconductors, Academia Sinica)

Abstract

Crystallizing amorphous silicon thin films by incoherent light from an arc discharge, the spirals with different appearances are sometimes formed in the radiative crystalline parts of certain samples. It is suggested that the spirals result from the reaction between growing crystallites and the stopping mechanisms in explosive crystallization. The stopping mechanisms, such as heat sinks, are related to the inhomogeneity of the films.