

## نقش عملیات آنیل بر ویژگی‌های فیلم‌های سیلیکونی ایجاد شده به روش EB-PVD

میثم زرچی\* و شاهرخ آهانگرانی

سازمان پژوهش‌های علمی و صنعتی ایران، پژوهشکده مواد پیشرفته و انرژی‌های نو، تهران، ایران

(دریافت مقاله: ۱۳۹۶/۲/۱۰ - دریافت نسخه نهایی: ۱۳۹۹/۳/۱۱)

چکیده- این پژوهش، به بررسی ویژگی‌های ساختاری و اپتیکی فیلم‌های چنددانه سیلیکون حاصل از اعمال تکنولوژی تبخیر پرتو الکترونی فاز بخار (EB-PVD) روی ویفر سیلیکونی، اختصاص دارد. این فیلم‌ها ابتدا آمورف بوده و طی آنیل به یک فاز جامد بلوری گذار کردند. آنیل در کوره تیوبی تحت اتمسفر گاز خنثی در دماهای مختلف انجام شد. ریزساختار فیلم‌ها برای درک ارتباط بین ترکیب بلوری / آمورف، اندازه دانه و مشخصات فیلم‌ها، مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان‌دهنده کاهش زبری با افزایش دمای آنیل و افزایش تراکم ساختاری است. همچنین، نتایج حاصل از طیف میکرو رامان نشان‌دهنده تشکیل و افزایش میزان نانوبلورهای سیلیکون در شرایط آنیل و همچنین با افزایش ضخامت پوشش بر اثر عیوب ساختاری بود.

واژه‌های کلیدی: عملیات حرارتی، آمورف سیلیکون، EB-PVD، مورفولوژی سطح، نانوبلور.

## The Role of Annealing on Properties of Silicon Films Deposited By EB-PVD

M. Zarchi\* and Sh. Ahangarani

Advanced Materials & Renewable Energies Department, Iranian Research Organization for Science and Technology, Tehran, Iran.

**Abstract:** *The structural and optical properties of polycrystalline silicon films obtained on a silicon wafer by electron beam physical vapor deposition (EBPVD), were studied in this paper. These films were initially amorphous and changed to a crystalline solid phase during annealing. Annealing was performed in an inert gas atmosphere tube furnace at different temperatures. Micro-structure of the films was analyzed to know the relationship between the crystalline / amorphous composition, grain size and characteristics of the films. The results showed a decrease in roughness with increasing annealing temperature and structural density. Moreover, results of Micro-Raman spectrum showed formation and increase of silicon nanocrystals in the annealed condition when the thickness of the coating increased due to structural defects.*

**Keywords:** *Annealing, Amorphous silicon, EBPVD, Surface morphology, Nano-Crystal.*

\* : مسئول مکاتبات، پست الکترونیکی: sky\_man1983@yahoo.com

## ۱- مقدمه

روش لایه‌نشانی فاز بخار به‌کمک پرتو الکترونی<sup>۱</sup> (EB-PVD) به‌عنوان یک روش مطلوب در ایجاد پوشش‌های چنددانه سیلیکون برای استفاده در تجهیزات الکترونیک و اپتیک محسوب می‌شود چرا که هم از نظر نرخ لایه‌نشانی، نسبت به روش‌هایی مانند رسوب‌گذاری شیمیایی فاز بخار همراه با پلاسما<sup>۲</sup> (PECVD) بالاتر است و هم از نظر قیمت نسبت به این روش هزینه کمتری دارد [۱ و ۲]. علاوه بر آن، بسیاری از مشکلات مانند سمی بودن مواد اولیه، خاصیت انفجاری و یا سایر پارامترهای کاهنده ایمنی را نیز ندارد [۳-۵]. یکی از راه‌های رسیدن به یک پوشش حاوی چنددانه‌های سیلیکون که دارای کیفیت مناسب نیز باشد تشکیل فاز آمورف سیلیکون به‌کمک روش (EB-PVD) در دمای پایین و سپس اعمال شرایط آنیل در محیط گاز خنثی و یا تحت خلأ برای تشکیل فاز جامد به صورت دانه‌های بلوری نانو ساختار و سپس خوشه‌های بلوری میکروساختار است که این فرایند در دمای بالاتر از ۵۰۰ درجه سانتی‌گراد انجام می‌شود [۶ و ۷]. ایجاد چنین فیلم‌هایی به این روش از یک سو به دلیل تشکیل یک بافت غیرهمگن و زیر روی زیرلایه که منجر به حبس نور می‌شود [۸]، مورد پذیرش است و از سوی دیگر به دلیل کاهش انرژی مصرفی روشی به نسبت ارزان محسوب می‌شود و به دلیل شرایط کار در دمای پایین، نیاز به مواد مقاوم به حرارت برای زیرلایه را نیز ندارد [۹-۱۱].

به‌طور کلی برای رسیدن به بهترین کیفیت فیلم تشکیل شده به کارگیری یک زیرلایه با کیفیت بالا، بدون آلودگی و مقاوم در برابر عملیات مختلف پس از لایه‌نشانی بسیار مهم است. به کارگیری ویفر سیلیکونی استاندارد به سبب داشتن ویژگی‌های فوق‌بسیار مناسب است که در این تحقیق مورد استفاده قرار گرفت [۱۲ و ۱۳].

## ۲- مواد و روش تحقیق

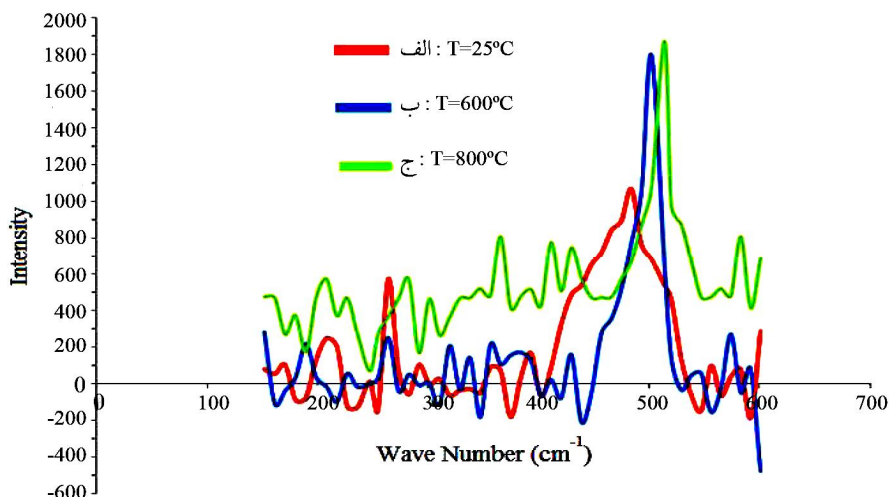
فیلم‌هایی از سیلیکون آمورف در ضخامت‌های تقریبی ۵۰۰

نانومتر روی ویفر سیلیکونی نوع n هشت اینچی پس از آماده‌سازی نمونه‌ها ایجاد شد. لایه‌نشانی به‌کمک روش (EB-PVD) انجام شد که در آن از سیستم پرتو الکترونی<sup>۳</sup> (EDS 160) استفاده می‌شود. برای بررسی توپولوژیکی پوشش تشکیل شده از میکروسکوپ نیروی اتمی<sup>۴</sup> (AFM) و برای بررسی بافت سطح از روش محاسبه زبری میانگین استفاده شد. سیستم مورد استفاده دارای پروبی به قطر پنج نانومتر است و فرکانس مورد استفاده ۴۰۰ کیلوهرتز و سطح مورد بررسی ۱۰۰۰ × ۱۰۰۰ نانومتر است. برای بررسی بافت سطح از روش محاسبه زبری میانگین استفاده شد.

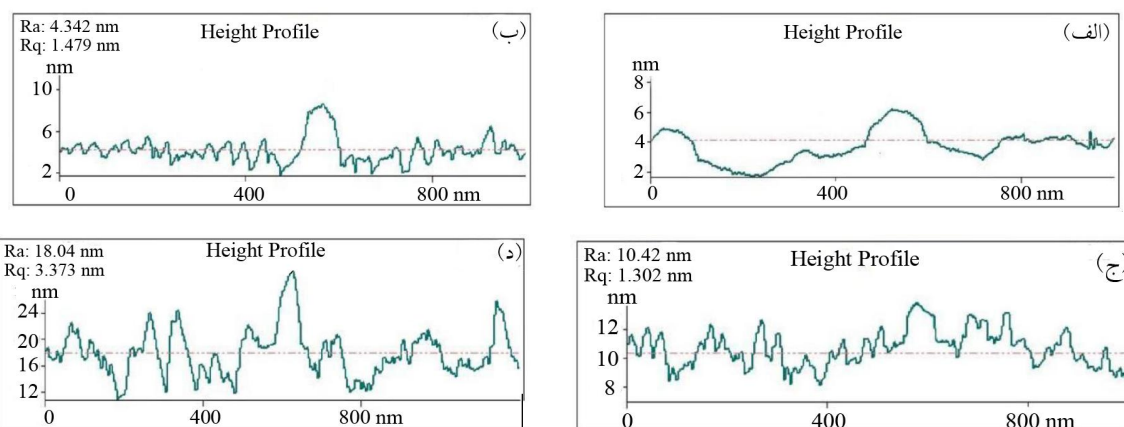
برای تشکیل چنددانه‌های سیلیکون در زمینه آمورف اولیه از عملیات حرارتی آنیل در دماهای ۴۰۰، ۶۰۰ و ۸۰۰ درجه سانتی‌گراد استفاده شد تا فرایند تبلور فاز جامد<sup>۵</sup> SPC برای تشکیل نانوبلورهای سیلیکون انجام شود تا انتقال از فاز آمورف به فاز بلوری انجام پذیرد [۱۴ و ۱۵]. ویژگی‌ها و پارامترهای فیلم‌های لایه‌نشانی شده به‌کمک طیف میکرو رامان<sup>۶</sup> در این کار، مورد بررسی قرار گرفت. سیستم  $\mu$ RAMAN HORIBA شرکت Avantes برای اندازه‌گیری میکرو رامان استفاده شده است. این دستگاه ساخت کشور هلند بوده و لیزر استفاده شده برای محاسبه طیف‌ها دارای طول موج ۵۳۲ و ۷۸۲ بر سانتی‌متر و رزولوشن اپتیکی ۱۰ بر سانتی‌متر بود.

## ۳- بحث و نتایج

همان‌طور که در نمودار میکرورامان در دماهای مختلف و زمان یک ساعت نشان داده شده است، ساختار فیلم آمورف اولیه تحت تأثیر شرایط آنیل تغییر کرده است (شکل ۱). در شکل (۱) تصاویر میکرو رامان نمونه‌های بدون آنیل قله در محدوده ۴۸۳ بر سانتی‌متر قرار دارد و پهن شدن قله نشان از آمورف بودن ساختار دارد [۱۶]. ولی با اعمال عملیات حرارتی که در دمای بالاتر از ۵۰۰ درجه سانتی‌گراد به صورت آنیل حرارتی سریع<sup>۷</sup> (RTA) انجام می‌شود، اول قله در محدوده ۵۱۰ بر سانتی‌متر ایجاد می‌شود که نشان از تشکیل ساختار مخلوط از



شکل ۱- طیف میکرو رامان از نمونه‌های با ضخامت ۵۰۰ نانومتر (رنگی در نسخه الکترونیکی)



شکل ۲- نمودار خطی میکروسکوپی نیروی اتمی از دانه‌ها در نمونه‌ها با افزایش مقدار عملیات حرارتی: (الف) بدون عملیات حرارتی،

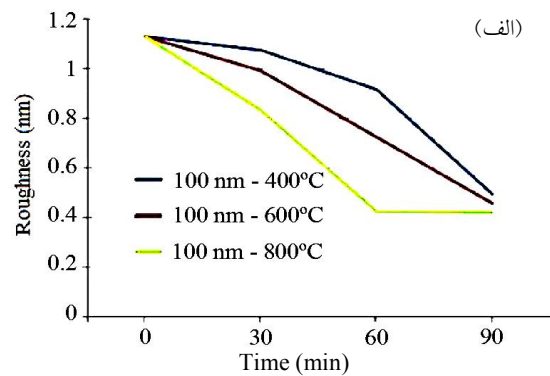
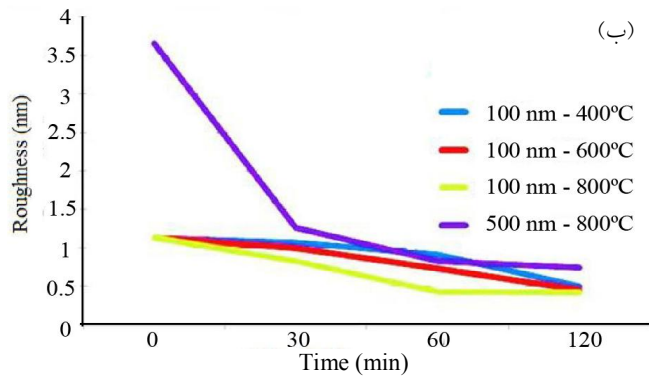
(ب) دمای ۴۰۰، (ج) دمای ۶۰۰ و (د) دمای ۸۰۰ درجه سانتی‌گراد

می‌یابد. در واقع در این دانه‌ها، شکل دانه کمتر تحت تأثیر فشار همسایه آمورف خود قرار گرفته و به صورت بیشترین سطح در برابر کمترین حجم شکل می‌گیرد. با رشد بیشتر دانه و حضور دانه‌های مجاور بلوری که روی سطح آمورف تشکیل می‌شوند به یکدیگر فشار وارد کرده و محیط این دانه‌ها تغییر می‌کند.

شکل (۳) مقایسه مقدار زبری به دست آمده از بررسی حاصل از میکروسکوپ نیروی اتمی را نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود با افزایش زمان پخت از صفر تا دو ساعت در هر درجه حرارت کاهش در مقدار زبری به وجود آمده است. مقایسه میزان زبری برای نمونه ۱۰۰ نانومتری

آمورف به بلوری دارد و این درحالی است که با افزایش دما تا ۸۰۰ درجه سانتی‌گراد باریک‌تر شدن (تیز شدن) قله را داریم که نشان از رشد اندازه بلورها دارد که در نهایت منجر به ادغام آنها با هم و تشکیل خوشه‌هایی با اندازه‌های بزرگ‌تر می‌شود.

برای بررسی بیشتر روی این نمونه‌ها، چندین نمودار خطی میکروسکوپ نیروی اتمی از دانه‌های بلوری گرفته شد که در نمودارهای شکل (۲) نشان داده شده است. نمودارهای خطی از نمونه‌های مختلف نشان داد دانه‌ها زمانی که به صورت مجزا و منفرد هستند، به صورت کروی (کلاهک مانند) روی سطح قرار می‌گیرند که میزان مدور بودن آن با افزایش اندازه دانه کاهش



شکل ۳- مقایسه زبری فیلم سیلیسیم آنیل شده در دماهای مختلف: (الف) ضخامت ۱۰۰ نانومتر و (ب) ۵۰۰ نانومتر (رنگی در نسخه الکترونیکی)

جدول ۱- تغییرات زبری در شرایط مختلف آنیل

شرایط عملیات	بدون عملیات	۴۰۰ درجه سانتی گراد	۶۰۰ درجه سانتی گراد	۸۰۰ درجه سانتی گراد
زبری (نانومتر)	زبری (نانومتر)	زبری (نانومتر)	زبری (نانومتر)	زبری (نانومتر)
۱۰۰ nm - ۱ nm/s	۱/۱۳			
نیم ساعت		۱/۰۷۵	۰/۹۱۸۱	۰/۴۹۷۸
۱ ساعت		۰/۹۹۳۵	۰/۷۲۶۶	۰/۴۵۹۱
۲ ساعت		۰/۸۳۳۷	۰/۴۲۵۳	۰/۴۲۰۱
۵۰۰ nm - ۱ nm/s	۳/۶۵۹			
نیم ساعت				۱/۲۵۹
۱ ساعت				۰/۸۲۶۹
۲ ساعت				۰/۷۴۰۱

فیلم‌های آمورف ایجاد شده (با استفاده از روش آنیل تحت محیط کنترل شده) و ایجاد فرایند انتقال فازی و تشکیل چنددانه‌ها پرداخت. نتایج نشان داد:

۱- عملیات حرارتی منجر به افزایش اندازه بلورک‌ها، تجمع آنها و در نهایت تشکیل خوشه‌های سیلیکون شد.

۲- دانه‌ها زمانی که به صورت مجزا و منفرد هستند، کروی شکل هستند و میزان مدور بودن آن با افزایش اندازه دانه کاهش می‌یابد.

۳- رشد بیشتر دانه و حضور دانه‌های مجاور بلوری روی سطح آمورف، به یکدیگر فشار وارد کرده و محیط این دانه‌ها تغییر می‌کند.

بازپخت شده نشان داد که در درجه حرارت ۶۰۰ درجه سانتی گراد بهترین نتیجه ایجاد می‌شود. چرا که از یک سو میزان زبری با شیب مناسب کاهش یافته است و از سوی دیگر تنش حرارتی در نمونه ایجاد نمی‌کند. در نمونه‌هایی که دارای پوشش با ضخامت ۵۰۰ نانومتر هستند نیز نتایج مشابه است، ولی به دلیل حضور نانوبلورهای موجود در پوشش آمورف زبری به طور کلی بالاتر است (جدول ۱).

#### ۴- نتیجه گیری

مطالعه حاضر به کمک میکروسکوپ نیروی اتمی و تحلیل‌های میکرورامان به بررسی حضور نانوبلورهای تشکیل شده در

کاهش یافته و تنش حرارتی در نمونه ایجاد نشده است، بهترین شرایط آزمون بود.

۴- عملیات حرارتی منجر به کاهش میزان زبری شد. دمای ۶۰۰ درجه سانتی گراد که در آن میزان زبری با شیب مناسب

## واژه‌نامه

1. electron-beam physical vapor deposition (EB-PVD)
2. plasma enhanced chemical vapour deposition (PECVD)
3. Energy-Dispersive Spectroscopy (EDS)
4. Atomic force microscopy (AFM)
5. Solid-Phase Crystallization Process (SPC)
6.  $\mu$ Raman
7. Rapid Thermal Analysis (RTA)

## مراجع

1. Jun-Chin, L., Chen-Cheng, L., and Yu-Hung, C., "Enhancing Light-Trapping Properties of Amorphous Si Thin-Film Solar Cells Containing High-Reflective Silver Conductors Fabricated using a Nonvacuum Process", *International Journal of Photoenergy*, Vol. 2014, pp. 1-5, 2014. doi.org/10.1155/2014/627127.
2. Cheng, Q., Zeng, Y., and Huang, J., "Effect of Substrate Temperature on Conductivity and Microstructures of Boron-Doped Silicon Nanocrystals in  $\text{SiO}_x$  Thin Films", *Physica*, Vol. e53, pp. 36-40, 2013.
3. Li, M., Li, J., and Jiang, Q., "Size-Dependent Band-Gap and Dielectric Constant of Si Nanocrystals", *International Journal of Modern Physics*, Vol. B24, pp. 2297-2301, 2010.
4. Dmitriev, P., Makarov, S., and Milichko, A., "Laser Fabrication of Crystalline Silicon Nanoresonators from an Amorphous Film for Low-Loss All-Dielectric Nanophotonics", *Nanoscale*, Vol. 8, pp. 5043-5048, 2016. doi.org/10.1039/C5NR06742A
5. Mercaldo, L., and Usatii, I., "Advances in Thin-Film Si Solar Cells by Means of  $\text{SiO}_x$  Alloys", *Energies*, Vol. 9, No. 3, p. 218, 2016.
6. Melskens, J., Schnegg, A., Baldansuren, A., Lips, K., and Plokker, M. P., "Structural and Electrical Properties of Metastable Defects in Hydrogenated Amorphous Silicon", *Physical Review B*, Vol. 91, p. 245207, 2015.
7. Wu, K. H., and Li, Ch., "Light Absorption Enhancement of Silicon-Based Photovoltaic Devices with Multiple Bandgap Structures of Porous Silicon", *Journal of Materials*, Vol. 8, pp. 5922-5932, 2015.
8. Chena, Ch., Lina, P. Y., and Li, T. T., "Kinetic Study of the Thermal Crystallization Behavior of Hydrogenated Amorphous Silicon Prepared by ECRCVD", *Journal of Solid State Science and Technology*, Vol. 3, No. 5, 2014. DOI:10.1149/2.018405jss.
9. Kitahara, K., Ishii, T., and Suzuki, J., "Characterization of Defects and Stress in Polycrystalline Silicon Thin Films on Glass Substrates by Raman Microscopy", *International Journal of Spectroscopy*, Vol. 2011, pp. 1-14, 2011.
10. Xu, X., and Li, Sh., "Silicon Nanowires Prepared by Electron Beam Evaporation in Ultrahigh Vacuum", *Nanoscale Research Letters*, Vol. 7, No. 1, p. 243, 2012.
11. Li, Q., "Investigation on Solid-Phase Crystallization Techniques for Low Temperature Polysilicon Thin-Film Transistors", Thesis. Rochester Institute of Technology, 2013.
12. Etsu, Sh., "Silicon Wafer Cleaning", *MicroSi*, Vol. 480, pp. 893-8898, 2013.
13. Chou, Ch. H., Lee, I. Ch., and Yang, P. Y., "Effects of Crystallization Mechanism on The Electrical Characteristics of Green Continuous-Wave-Laser-Crystallized Polycrystalline Silicon Thin Film Transistors", *Applied Physics Letters*, Vol. 103, No. 5, 2013.
14. Lei, K. F., "Materials and Fabrication Techniques for Nano and Microfluidic Devices, in Microfluidics in Detection Science", *Lab-on-a-chip Technologies*, Vol. 2014, pp. 1-28, 2014.
15. Sinclair, R., "In Situ High-Resolution Transmission Electron Microscopy of Material Reactions", *Functional Oxide Interfaces*, Vol. Vol. 38, No. 12, pp. 1065-1071, 2013.
16. Cristina, R., and Gavrilă Obreja, R. A. C., "Microfabrication and Analysis of Polysilicon Thin Layers for MEMS Vibrating Structures", *Analog Integrated Circuits and Signal Processing*, Vol. 82, No. 3, pp. 611-620, 2015.
17. Marcins, G., Butikova, J., and Tale, I., "Crystallization Processes of Amorphous Si by Thermal Annealing and Pulsed Laser Processing", *Materials Science and Engineering*, Vol. 23, No. 1, p. 012035, 2011.