

微晶硅薄膜沉积过程中的等离子体 光学与电学特性研究*

张发荣^{1)†} 张晓丹¹⁾ Amanatides E²⁾ Mataras D²⁾ 赵静³⁾ 赵颖¹⁾

1) 南开大学光电子薄膜器件与技术研究所, 天津市光电子薄膜器件与技术重点实验室;

光电信息技术科学教育部重点实验室(南开大学), 天津 300071)

2) 希腊帕特雷大学等离子体技术实验室, 帕特雷, 希腊 26500)

3) 天津新华职工大学, 天津 300040)

(2007 年 8 月 17 日收到, 2007 年 9 月 18 日收到修改稿)

采用空间分辨光发射谱和傅里叶变换功率阻抗分析仪研究了衬底偏压和辉光功率对微晶硅薄膜沉积过程中的等离子体光学与电学特性的影响. 研究表明, 在交流偏压(AC)、悬浮(floating)、负直流加交流(-DC+AC)偏压下, H_{α} 发射强度空间分布规律相似, 平均鞘层长度相等; 正直流加交流(+DC+AC)偏压和接地(grounded)时 H_{α} 发射强度显著增强, 并存在双峰(double layers)现象. 增大功率, H_{α} 发射强度也随着增大, 并在 17 W 与 22 W 之间产生跳变. 电学测试发现功率增大, 等离子体电阻降低, 电抗降低, 电容性增强. 并对此进行了分析.

关键词: 等离子体, 光发射谱, 衬底偏压, 辉光功率

PACC: 5225, 8115H, 7360F, 0765E

1. 引 言

氢化微晶硅薄膜太阳能电池既具有晶体硅电池高效、高稳定的优势, 又具有薄膜电池工艺简单、节省材料的优点. 而且微晶硅电池可拓展光谱响应范围, 提高效率的潜力很大. 因此成为近年来的研究热点^[1-3].

氢化微晶硅薄膜通常采用等离子体增强化学气相沉积(PECVD)的方法制备. 通过调整衬底温度、频率、气压、功率、流量等宏观沉积参数, 获得高速沉积的器件质量级微晶硅薄膜.

在衬底上施加偏压也已经作为可能提高薄膜性能和质量的一种手段来加以研究. Cabarrocas 等研究表明, 衬底施加负 50 V 偏压, 薄膜光敏性最高. 非晶硅的中间态和乌巴赫能级密度降至最低, 电子漂移迁移率与寿命的乘积和空穴漂移迁移率与寿命的乘积取得极大值^[4]; Yasuaki 等研究表明, 偏压可以调节薄膜晶化率及电池性能, 在衬底偏压 + 20 V 时电

池短路电流密度和填充因子最高, 电池效率比零偏压和负偏压时至少高出 1.7%^[5]. 这些结果表明, 偏压对等离子体具有一定的调制作用. 但是, 目前衬底偏压对材料和电池影响机理的研究还不够全面、深入. 本文从光发射谱的角度进行了相关研究.

功率在薄膜沉积中起到重要作用, 一定范围内增大功率可有助于提高微晶硅薄膜的沉积速率^[6], 还可以通过功率调控在过渡区获得高质量微晶硅^[7]. 从功率源输出的功率由于消耗途径不同可以划分成三部分^[8,9]: 第一, 等离子体辉光状态下在功率电极与其电极鞘及功率输入线之间产生了杂散阻抗. 在射频条件下, 这部分阻抗会消耗掉相当大的一部分功率. 第二, 消耗在匹配器及传输线路上的功率. 第三, 等离子体辉光功率. 而传统的实验方法往往是测量功率源输出功率或者匹配器输出功率作为实验参数. 这个值与等离子体辉光功率有较大出入. 因此, 本实验采用傅里叶变换功率和阻抗分析仪^[8]测试辉光功率, 作为实验参数, 研究辉光功率对等离子体学特性的影响.

* 国家自然科学基金(批准号 60506003), 天津市自然科学基金(批准号 05YFJMJC01600), 南开大学博士启动基金(批准号 J02031), 国家重点基础研究发展规划项目(批准号 2006CB202602 和 2006CB202603), 科技部国际合作重点项目(批准号 2006DFA62390)和教育部新世纪人才计划资助的课题.

† E-mail: farongzhang@yahoo.com

2. 实 验

沉积硅薄膜的等离子体增强化学气相沉积 (PECVD) 系统是平行板电容耦合的, 真空度可达 10^{-9} mbar (1 bar = 10^5 Pa). 电极为圆形, 功率电极直径 120 mm, 接地电极直径 90 mm, 并且接地电极可以水平移动以便调节两电极之间的距离. 所有实验都是在激发频率为 13.56 MHz 条件下进行的. 实验选取已优化的沉积条件^[10,11]: 电极间距为 15 mm, 流量 400 sccm, 气压 2.5 Torr (1 Torr = 1.33322×10^2 Pa), 衬底加热温度 250°C. 衬底为普通玻璃.

偏压系列 维持其他实验参数恒定, 施加偏压分别为 AC, +DC + AC, -DC + AC, 悬浮 (floating) 以及接地 (grounded). 其中交流电压 AC 幅值 100 V, 频率 20 kHz, 正负直流电压幅值 100 V.

采用傅里叶变换功率和阻抗分析仪测量等离子体电流、电压、等离子体辉光功率及电流与电压的相差. 采用 Andor 公司 ICCD (istar734) 测量等离子体一维光发射谱. 空间分辨光发射谱可以观测到整个电极区域某一发射光谱情况, 克服了定点检测的不足^[12].

3. 结果与讨论

3.1. 偏压对等离子体光学特性的影响

光发射谱技术, 由于其装置简单、原位监测且对等离子体无干扰而成为等离子体诊断的一种重要手段. 图 1 为恒定硅烷浓度 4% (SC = $[\text{SiH}_4] / ([\text{SiH}_4] + [\text{H}_2]) = 4\%$) 等离子体辉光功率 35 W 条件下, 衬底电极施加不同偏压测得的 $\text{H}\alpha$ 空间发射谱. 从图中可以观察到 AC, floating 及 -DC + AC 偏压下, $\text{H}\alpha$ 发射强度空间分布很类似: 在功率电极附近存在一个发射峰, 但这个发射峰很窄, 随着距离功率电极的距离增大, 这个发射峰强度迅速降低, 直到接地电极附近才又产生一个很小的发射峰 (图中竖实线“发射峰”所示). 相对于前面所述几种偏压情况, 在 grounded 和 +DC + AC 时, $\text{H}\alpha$ 发射强度相对较大, 并且峰位宽, 发射峰强度随着距离功率电极的距离增大而降低的相对缓慢, 在接地电极附近存在的发射峰强度也较强.

通常, 受鞘层加速后的电子具有很高的能量, 会

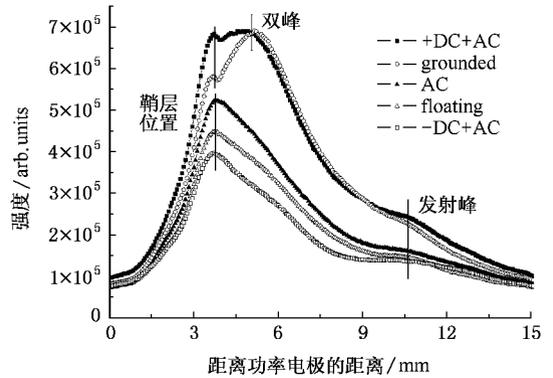


图 1 SC4% 辉光功率 35 W 条件下 $\text{H}\alpha$ 发射强度随偏压变化的空间强度分布图

与鞘层附近的分子、原子发生碰撞, 引起大量的分子、原子激发与电离, 因此一般根据发射峰所在的位置来估计平均鞘层长度. 图 1 中, -DC + AC, floating, AC 条件下它们发射峰几乎在相同的位置, 因此平均鞘层长度也基本相等, 如图中竖直线“鞘层位置”所示. 而在图 1 中 +DC + AC 与 grounded 条件下则出现了两个发射峰, 即 double layers 现象^[13-18]. 两个峰分别位于距离射频电极约 3.8 mm 与 5.1 mm 处, 如图中两短竖实线“双峰”所示. 距离电极 5.1 mm 处的发射峰认为是瞬时阴极鞘层向等离子体区扩张, 电子群受到鞘层加速作用获得高能量, 高能电子碰撞激发气体形成的发射峰^[15,17,18]. 对于距离电极 3.8 mm 处存在的发射峰, 目前最有说服力的解释认为在瞬时阳极鞘层内存在一反向电场^[18,19], 电子受反向电场加速后形成高能电子碰撞激发气体形成的发射峰. 两个发射峰出现在同一射频周期中的不同阶段. 而非时间分辨光发射谱所观察到的强度分布则是很多射频周期叠加的结果, 因此最终呈现出两个同时存在的发射峰.

另, 我们知道, $\text{H}\alpha$ 能量阈值为 16.6 eV ^[20], 图 1 中 +DC + AC 与 grounded 条件下发射峰强度大且峰位宽, 说明超过 $\text{H}\alpha$ 能量阈值的有效电子数增大了. 从而有更多的电子有能力与氢气碰撞, 使氢气分解并激发, 而研究也已经表明: 氢原子对微晶硅薄膜的沉积是非常重要的^[21,22]. 实际上, 电子能量增大, 硅烷分解也会相应增强, 薄膜生长前驱物增多. 加之薄膜生长前驱物距离衬底更近, 扩散距离变短, 到达薄膜生长表面前驱物通量增大, 因此, 有利于薄膜沉积. 通常氢化微晶硅薄膜都是在 grounded 条件下制备, 而从上面的光发射谱测试的结果来看, +DC + AC 偏压更有助于微晶硅薄膜的沉积.

3.2. 功率对等离子体光学与电学特性的影响

从上面的研究可以看出:衬底电极上加 + DC + AC 偏压有助于微晶硅薄膜的沉积,而我们知道功率也是影响微晶硅薄膜沉积速率和微结构的一个重要参数,为此也对在衬底电极上加 + DC + AC 偏压的条件下,等离子体中实际的辉光功率对其光学和电学特性的影响进行了研究.

图 2 为 + DC + AC, SC3.5% 时 H_{α} 发射强度随辉光功率增加的空间分布图.从图中可以观察到在整个功率变化范围内,两个电极区域间存在两个发射峰,最强的发射峰位于功率电极附近,另外一个发射峰强度较弱,位于接地电极附近.随着功率的增大,两个发射峰的强度均得到相应的加强.功率由 17 W 增大到 22 W 时, H_{α} 的发射峰强度增大幅度较大.在功率超过 22 W 时,继续增大功率,位于接地电极附近的发射峰强度增大幅度变小,位于功率电极附近的发射峰强度变化略大.图 2 中发射强度在 17 W 与 22 W 之间产生跳变,可能是在 22 W 以后电子达到 H_{α} 能量阈值的数目迅速增大的缘故.

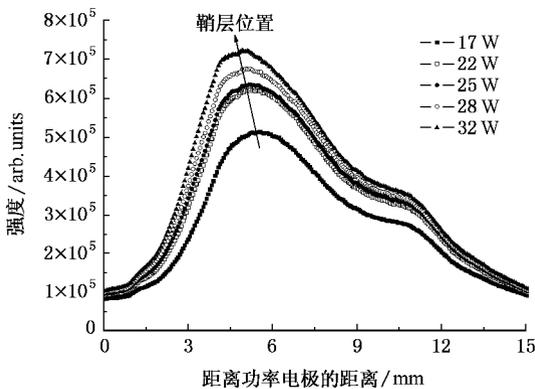


图 2 + DC + AC, SC 3.5% 条件下 H_{α} 发射强度随辉光功率变化的空间强度分布图

功率的改变最终会反映到等离子体内部电流、电压、阻抗、容抗等电学特性变化上.为了更好地了解等离子体内部变化情况,需要研究它们之间的变化关系.

等离子体辉光放电阻抗可以表示为

$$Z = \frac{U}{I} e^{j\varphi} = Z e^{j\varphi} = R + jX, \quad (1)$$

其中 φ 为电极两端电压与电流相位差. R 为放电阻抗实部,即电阻. X 为放电阻抗虚部,即容抗.实部、虚部由下式给出:

$$R = Z \cos \varphi = \frac{U}{I} \cos \varphi, \quad (2)$$

$$X = Z \sin \varphi = \frac{U}{I} \sin \varphi. \quad (3)$$

通过傅里叶功率变换和阻抗分析仪可以直接得到等离子体消耗的功率 P (W)、电流值 I (A)、电压值 U (V) 以及电压电流的相差 φ ($^{\circ}$).再根据(1)~(3)式可以计算出等离子体的阻抗.具体的计算结果如表 1 所示.

表 1 为相应于图 2 沉积条件下等离子体电学特性参数.观察表中数据可以发现,随着功率增大,等离子体电流不断增大,两极板上电压基本上也呈现上升趋势.表中电压电流相差 φ 值均为负,表明等离子体电压 U 滞后于等离子体电流 I ,等离子体呈电容性.表中结果还显示随着功率增大,电阻值 R 降低,容抗 X 降低,说明等离子体电容性增强了^[9].

表 1 + DC + AC, SC3.5% 不同功率条件下等离子体电学特性参数

P/W	I/A	U/V	$\Phi(^{\circ})$	Z/Ω	R/Ω	$ X /\Omega$
17.3	0.28	186	-48.6	664	437	496
22.3	0.33	196	-45.9	594	417	431
25.8	0.35	212	-45.5	606	428	435
28.0	0.37	209	-44.4	565	423	420
32.0	0.41	221	-44.3	539	390	381

等离子体电流是离子电流 J_i 、电子电流 J_e 与位移电流 J_d 之和,即

$$J = J_i + J_e + J_d. \quad (4)$$

在等离子体鞘层中,位移电流占主导地位.因此(4)式可以近似写为

$$J \approx J_d = \omega \epsilon_0 E, \quad (5)$$

其中角频率 ω 、真空介电常数 ϵ_0 都是恒定值,所以功率增大,继而平均电场 E 增大,电流增大.由于鞘层屏蔽作用,外界电压绝大部分都施加到了鞘层上.因此,场强 E 增大与表 1 电压 U 增大是相对应的.场强增加,对电子加速作用增强.电子能量升高,达到能量域值的电子数增大,从而图 2 结果显示,随功率增大, H_{α} 发射强度增大了.

对于等离子体的电阻 R ,它服从公式

$$R = \frac{v_m d_b m_e}{A e^2 n_{Av}}, \quad (6)$$

其中, d_b 为平均等离子体长度, A 为电极面积, m_e 及 e 为电子质量与电荷量, n_{Av} 为电子密度, v_m 与电子、分子的碰撞频率有关.气压、频率恒定时, v_m 变化

不大,所以在此沉积条件下,电极面积 A 等参数均维持恒定,则电阻 R 是电子密度和平均等离子体长度综合作用的结果.图 2 箭头所示,随着功率增大,鞘层厚度降低,等离子体长度增大.由此可推测电子密度增大幅度较大,最终使得放电阻抗降低.

4. 结 论

采用空间分辨光发射谱和傅里叶变换功率和阻

抗分析仪研究了微晶硅薄膜沉积过程中衬底偏压和辉光功率对等离子体光学与电学特性的影响.对施加不同衬底偏压的研究表明:AC, -DC + AC 及 floating 时 $H\alpha$ 发射强度空间分布有类似的性质; grounded 及 +DC + AC 偏压下, $H\alpha$ 发射强度显著增强,并且存在 double layers 现象,而且此实验结果给出 +DC + AC 的条件更有助于氢原子的产生.另,对辉光功率的研究表明,随着功率增大 $H\alpha$ 发射强度相应增强,电阻降低,电抗降低,等离子体电容性增强.

- [1] Shah A ,Vallat Asuvain E ,Torres P ,Meier J ,Kroll U ,Hof C ,Droz C ,Goerlitzer M ,Wyrsh N ,Canecek M 2000 *Materials Science and Engineering B* **69-70** 219
- [2] Mai Y ,Klein S 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 2839
- [3] Van Den Donker M N 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 183504
- [4] Cabarrocas P R I ,Morin P ,Chu V ,Conde J P ,Liu J Z ,Park H R ,Wagner S 1991 *J. Appl. Phys.* **69** 2942
- [5] Yasuaki I ,Cao X M ,Du W H ,Das C D ,Deng X M 2006 *ieeexplore. ieee.org* 1493-1496
- [6] Matsui T ,Kondo M ,Matsuda A 2003 *3rd world conference on photovoltaic energy conversion* 1548-1551
- [7] Mai Y ,Klein S ,Carius R ,Wolff J ,Lambertz A ,Finger F 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 114913
- [8] Spiliopoulou N ,Matras D ,Rapakoulis D E 1996 *J. Vac. Sci. Technol. A* **14** 2757
- [9] Zhang X D ,Zhang F R ,Amanatides Eleferious ,Mataras Dimitris ,Zhao Y 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5309 (in Chinese) [张晓丹、张发荣、Amanatides Eleferious ,Mataras Dimitris 赵颖 2007 物理学报 **56** 5309]
- [10] Katsia E ,Amanatides E ,Mataras D ,Rapakoulis D E 2004 *19th European photovoltaic solar energy conference* 1601
- [11] Katsia E ,Amanatides E ,Mataras D ,Soto A ,Voyiatzis G A 2005 *Solar Energy Materials & Solar Cells* **87** 157
- [12] Amanatides E ,Mataras D ,Van Den Donker M ,Rech B 2005 *Solar Energy Materials & Solar cells* 795
- [13] Gottscho Richard A 1987 *Physical Review A* **36** 2233
- [14] Boeuf J P 1987 *Physical Review A* **36** 2782
- [15] Mutsukura Nobuki 1989 *J. Appl. Phys.* **66** 4688
- [16] Tochikubo F ,Makabe T ,Kakuta S ,Suzuki A 1992 *J. Appl. Phys.* **71** 2143
- [17] Leroy O ,Stratil P ,Perrin J ,Jolly J ,Belenguer P 1995 *J. Phys. D : Appl. Phys.* **28** 500
- [18] Hammad A 2001 *J. Phys. IV France* 11 Pr3-779
- [19] Czametzki U ,Luggenholscher D ,Dobele HF 1999 *Plasma Sources Sci. Technol.* **8** 230
- [20] George A ,Khayrallah 1976 *Physical Review A* **13** 1989
- [21] Matsuda A 1999 *Thin solid Films* **337** 1
- [22] Wang Y ,Han X Y ,Ren H Z ,Hou G F ,Guo Q C ,Zhu F ,Zhang D K ,Sun J ,Xue J M ,Zhao Y ,Geng X H 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 947 (in Chinese) [王岩、韩晓艳、任慧志、侯国付、郭群超、朱锋、张德坤、孙建、薛俊明、赵颖、耿新华 2006 物理学报 **55** 947]

Study on the optical and electrical properties of plasma for the deposition of microcrystalline silicon^{*}

Zhang Fa-Rong^{1)†} Zhang Xiao-Dan¹⁾ Amanatides E²⁾ Mataras D²⁾ Zhao Jing³⁾ Zhao Ying¹⁾

¹) *Institute of Photo-electronics Thin Film Devices and Technique of Nankai University ;*

Key Laboratory of Photo-electronics Thin Film Devices and Technique of Tianjin ;

Key Laboratory of Photo-electronic Information Science and Technology (Nankai University) ,Ministry of Education ,Tianjin 300071 ,China)

²) *Plasma Technology Laboratory of Department of Chemical Engineering ,Patras University ,Greece 26500)*

³) *Tianjin Xinhua Staff and Workers University ,Tianjin 300040 ,China)*

(Received 17 August 2007 ; revised manuscript received 18 September 2007)

Abstract

Optical emission spectroscopy and Fourier transform power and impedance analysis have been used to investigate the effects of substrate bias and glow discharge on the plasma optical and electrical properties for the deposition of microcrystalline silicon. Results show that the H α emission intensity distribution has the same tendency under bias AC ,floating and $-DC + AC$, and their mean sheath lengths are almost located at the same position of the electrode gap. Compared to the above three bias states , H α emission intensity increases sharply and double layers appear under $+DC + AC$ bias and grounded conditions. Increasing of glow discharge power leads to the rise of H α emission intensity ,both the resistance and reactance decrease ,and the plasma becomes more capacitive.

Keywords : plasma , optical emission spectroscopy , substrate bias , glow discharge power

PACC : 5225 , 8115H , 7360F , 0765E

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60506003) ,the Natural Science Foundation of Tianjin of China (Grant No. 05YFJMJC01600) ,the Starting Project of Nankai University (Grant No. J02031) ,the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant Nos. 2006CB202602 and 2006CB202603) ,the Key International Cooperation Program of Ministry of Science and Technology ,China (Grant No. 2006DFA62390) and the Program for New Century Excellent Talents in University of China (NCET).

[†] E-mail : farongzhang@yahoo.com