

高速微晶硅薄膜沉积过程中的等离子体稳态研究*

方家 李双亮 许盛之 魏长春 赵颖 张晓丹†

(南开大学光电子薄膜器件与技术研究所, 光电子薄膜器件与技术天津市重点实验室, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300071)

(2013年2月1日收到; 2013年5月22日收到修改稿)

通过光发射光谱监测高速沉积微晶硅薄膜过程中 $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ 随沉积时间的变化趋势, 分析高速率微晶硅薄膜纵向晶化率逐渐增大的原因. 通过氢稀释梯度法, 即硅烷浓度梯度和氢气流量梯度法来改善材料的纵向均匀性. 结果表明: 硅烷浓度梯度法获得的材料晶化率从沉积 300 s 时的 53% 增加到沉积 600 s 时的 62%, 相比于传统方式下纵向晶化率从 55% 到 75% 的变化有了明显的改善. 在硅烷耗尽的情况下, 增加氢气流量一方面增加了气体总流量, 使得电子碰撞概率增加, 电子温度降低, 从而降低氢气的分解, 抑制 SiH_x 基团的放氢反应, 同时背扩散现象也得到了缓解, 使得 $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ 在沉积过程中逐渐增加的趋势有所抑制, 所制备的材料纵向晶化率在 240 s 后维持在 53%—60% 范围内, 同样改善了薄膜的纵向结构.

关键词: 光发射光谱, 高速沉积, 微晶硅, 纵向结构均匀性

PACS: 81.15.Gh, 73.61.Jc, 79.60.Dp

DOI: 10.7498/aps.62.168103

1 引言

非晶硅和微晶硅由于制备成本低而被广泛研究. 尤其是氢化微晶硅, 拓展了光谱利用范围且不存在光致衰退^[1-3], 但由于其吸收系数较小, 因此需要较厚的本征层. 提高沉积速率是一种降低生产成本的有效方法, 然而这会引引起薄膜材料质量的下降, 导致所制备电池的转换效率降低. 因此如何在高速沉积的同时使得微晶硅薄膜保持良好的光电性能成为微晶硅的研究热点之一^[4].

采用等离子体辅助化学气相沉积 (PECVD) 方法制备的微晶硅薄膜, 晶化率会随着沉积时间的增加逐渐的上升^[5], 使得材料的晶化率偏离所希望的过渡区; 对于高速沉积的微晶硅薄膜, 这种纵向结构的不均匀性会更甚. 这主要是由于在薄膜沉积过程中, 高能量的等离子体对衬底表面的不断的热辐射会使得衬底温度逐渐升高, 加大了吸附表面基团的弛豫能力^[6,7], 会逐渐提高薄膜的晶化率. 另外硅

烷背扩散的影响逐渐减小^[5], 相当于实际发生等离子体反应的硅烷气体浓度逐渐在减小, 晶化率就会逐渐增加, 也在一定程度上导致薄膜纵向结构的不均匀.

改善微晶硅纵向结构均匀性的常用方法有以下几种: 先通氢气法^[5]、增加气体总流量法^[8,9]、氢稀释梯度法^[10-12]和功率梯度法^[13]. 先通氢气法可以有效地抑制背扩散的发生. 德国于利希光伏研究所提出了通过硅烷浓度梯度的方法以及先通氢气法可明显减薄所制备材料的非晶孵化层厚度, 同时纵向均匀性也有所改善^[5]. 增加气体流量可以在不降低沉积速率的前提下, 减少气体滞留时间从而减小背扩散的影响, 同时也可以减弱薄膜沉积过程中等离子体的热辐射效应, 从而抑制衬底温度上升的趋势, 改善材料的纵向结构均匀性. 日本大阪大学通过增加气体的总流量结合光发射谱 (OES) 在线监测到随着气体总流量的增加, H_{α}^* 强度增加的趋势明显减弱, 所制备的材料光敏性提高, 缺陷减少, 纵向均匀性变好^[8]. 另外增加气体总流量, 也

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2011CBA00706, 2011CBA00707)、国家高技术研究发展计划 (批准号: 2013AA050302)、国家自然科学基金 (批准号: 60976051)、天津市科技支撑计划 (批准号: 12ZCZDGX03600)、天津市重大科技支撑计划 (批准号: 11TXSYGX22100) 和高等学校博士学科点专项科研基金 (20120031110039) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: xdzhang@nankai.edu.cn

使电子温度降低,从而减弱等离子体轰击能量,提高薄膜质量,材料的致密性也会提高.气体总流量的增大,光敏性提高的同时使得沉积速率提高,但是晶化率和暗电导减小^[9].通过逐步降低功率,可以使得 $I(\text{H}_\alpha^*)$ 和 $I(\text{SiH}^*)$ 保持相对恒定^[13].所谓氢稀释梯度法,就是针对晶化率随着沉积过程不断上升的现象,通过逐渐改变 SiH_4/H_2 混合气体中氢稀释的比例来改善材料纵向均匀性的方法.通过光发射谱监测到,随着氢稀释的增大, $I(\text{SiH}^*)$ 基团的发光峰逐渐减小,但是 $I(\text{H}_\alpha^*)$ 的强度基本保持不变,从而得到随着氢稀释的提高,材料的晶化率逐渐增大^[11].通过减少硅烷浓度,使得非晶孵化层的厚度减薄,从而使得纵向结构均匀性变好^[12].但是对于高速微晶硅薄膜的沉积,即硅烷处于耗尽区时,氢气流量变化的影响并没有论证.具体来说,氢稀释梯度法可分为两种,改变硅烷流量法和改变氢气流量法.由于硅烷分子和氢气分子的较大差异,这两种通过调节流量而改善薄膜的纵向结构均匀性的方法的物理机制是有所不同的.

本文针对两种不同的氢稀释梯度法,借助 OES 在线监测发光基团的稳态变化情况,分析表征氢含量的 $I(\text{H}_\alpha^*)$ 与 $I(\text{H}_\beta^*)$ 、表征沉积速率的 $I(\text{SiH}^*)$ 和表征材料晶化率的 $I(\text{H}_\alpha^*)/I(\text{SiH}^*)$ ^[14,15]在不同方法下的变化趋势,来探究这两种方法的物理机制.发现通过增大氢气流量法反而可以改善材料的纵向均匀性,通过所制备材料的纵向晶化率的变化验证了这一结论,并分析产生这一现象的原因.

2 实验

本实验采用单室 VHF-PECVD 沉积系统,电源频率为 80 MHz,电极间距为 7 mm,压强为 7 Torr (1 Torr = 133.322 Pa),气体总流量为 300 sccm (1 sccm = 1 mL/min),硅烷初始流量为 9 sccm,功率为 160 W,此时硅烷处于耗尽区,沉积速率最大,达到 21 Å/s,有利于高速微晶硅薄膜的制备.

通过 OES 监测表征沉积速率的 SiH^* (414 nm)和表征氢原子含量的 H_β^* (488 nm), H_α^* (656 nm)处的发光峰强度^[16].薄膜的晶化率通过拉曼光谱测试得到,所用拉曼仪器型号为 LabRAM HR 800.采用 488 nm 波长的激光从膜面入射探究其纵向晶化率的变化趋势.薄膜材料的厚度采用台阶仪从膜面来测定,所用型号为 VEECO 公司的 Dektak 150 型

台阶仪.

3 结果与讨论

3.1 硅烷流量梯度法

针对本实验系统,采用的硅烷梯度分别为 0.5 和 1 sccm,步长为 3 min,步数为 4,初始硅烷浓度为 9 sccm,来洞察硅烷流量梯度的作用.从图 1 可以看出,在硅烷流量不变的情况下, $I(\text{H}_\alpha^*)$ 随着沉积过程的进行而逐渐增加.这是由于随着等离子体辉光过程的延续,等离子体热辐射效应会使得衬底温度逐渐升高,导致等离子体电子温度上升,从而导致氢气分子的离解率增加,分解出更多的原子,而且背扩散的影响逐渐减弱, SiH_4 的浓度逐渐减弱,使得 H 原子的湮灭反应 $\text{SiH}_4 + \text{H} \rightarrow \text{SiH}_3 + \text{H}_2$ 减弱,进一步使得 $I(\text{H}_\alpha^*)$ 逐渐增加.采用硅烷流量梯度法后, $I(\text{H}_\alpha^*)$ 增加的幅度更大.这一方面是由于等离子体的热辐射效应,导致等离子体电子温度上升,从而促进氢气的离解;另一方面增加的硅烷,也分解出更多的原子氢.硅烷流量梯度从 0.5 sccm 增加到 1 sccm 后, $I(\text{H}_\alpha^*)$ 增加的幅度更大.

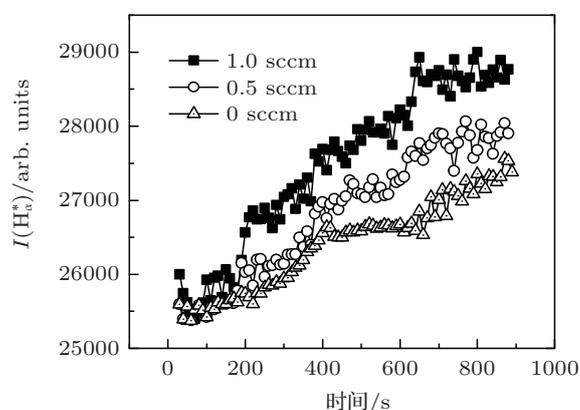


图 1 不同硅烷流量梯度法的辉光过程中 $I(\text{H}_\alpha^*)$ 随时间的变化趋势

由图 2(a)可知,当硅烷流量保持不变时,从辉光开始到 600 s 范围内, $I(\text{SiH}^*)$ 随着辉光的进行而逐渐减弱,其后相对稳定.辉光开始时 $I(\text{SiH}^*)$ 值高于稳定值约 10%.在等离子体辉光过程中,由于等离子体热辐射效应,电子温度逐渐增加,但在硅烷耗尽的情况下,电子温度的增加是不会影响 SiH^* 的强度的.因此, $I(\text{SiH}^*)$ 的下降不是电子温度上升直接引起的.而由图 1 可知,随着沉积过程的进行,原子氢逐渐增多,这会促进湮灭反应

$\text{SiH}_4 + \text{H} \rightarrow \text{SiH}_3 + \text{H}_2$ 的发生, 使得可以分解的硅烷分子数目变少, 从而出现 $I(\text{SiH}^*)$ 随着辉光的进行逐渐减弱的情况. 且随着沉积的进行, 背扩散的影响逐渐减小, 也是原因之一. 由图 2(b) 和 (c) 可知, 采用硅烷流量梯度法后, $I(\text{SiH}^*)$ 相较于流量不变时逐渐减小的情况不同, 当硅烷流量梯度为 0.5 sccm 时, $I(\text{SiH}^*)$ 在辉光过程中变化幅度较小; 而当梯度增加至 1 sccm 时, $I(\text{SiH}^*)$ 在辉光过程中甚至略有增加. 这是由于随着辉光的进行, 通过增加硅烷气体可以分解产生更多的 SiH 基团, 有效地抑制 $I(\text{SiH}^*)$ 逐渐减小的趋势. 当然, 若硅烷流量梯度过大, 就会导致等离子体中硅烷分子过多, 而硅烷分子相较于氢气分子的碰撞截面要大很多, 电子与这些分子发生碰撞的概率就会增加, 从而减小电子能量, 这不利于硅烷分子的分解.

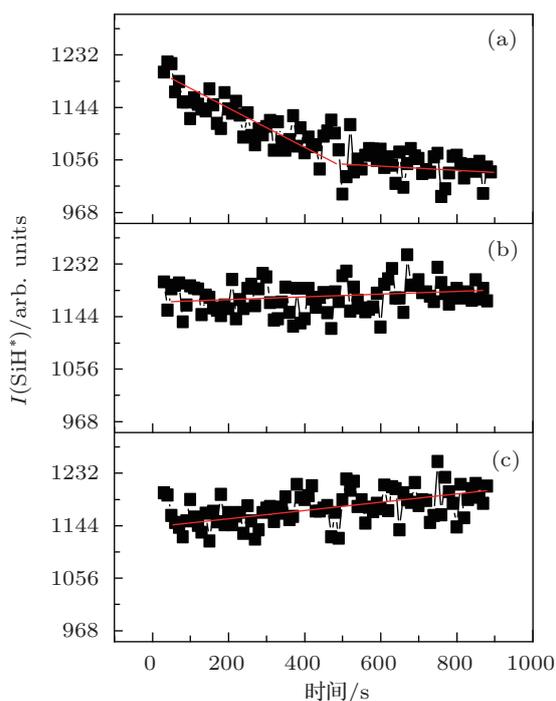


图 2 不同硅烷流量梯度法的辉光过程中 $I(\text{SiH}^*)$ 随时间的变化趋势 (a), (b), (c) 分别为硅烷流量梯度为 0, 0.5 和 1 sccm 的情况

从图 3(a) 可以看到, 当硅烷流量保持不变时, $I(\text{H}_\alpha^*)/I(\text{SiH}^*)$ 逐渐增加, 对应的是薄膜的晶化率逐渐上升. 而由图 3(b), (c) 可知, 采用硅烷流量梯度法时, 通过逐渐地增加硅烷流量, $I(\text{H}_\alpha^*)/I(\text{SiH}^*)$ 逐渐增加的趋势有所减缓. 当梯度为 1 sccm 时, $I(\text{H}_\alpha^*)/I(\text{SiH}^*)$ 在辉光过程中可以达到基本稳定.

采用上述三种硅烷流量梯度制备沉积时间分别为 300, 400, 500 和 600 s 的薄膜, 探究其纵向晶

化率 X_c 的变化趋势, 结果如图 4 所示.

由图 4 可知, 硅烷流量不变时, 所制备的薄膜纵向晶化率随着沉积时间的变化从 55% 增加到 75%, 纵向结构均匀性较差; 当硅烷流量梯度为 0.5 sccm 时, 薄膜的纵向晶化率从 54% 增加到 70%, 纵向结构均匀性依然较差; 进一步增加硅烷流量梯度为 1 sccm 时, 纵向晶化率从 53% 增加 62%, 纵向结构均匀性得到了改善.

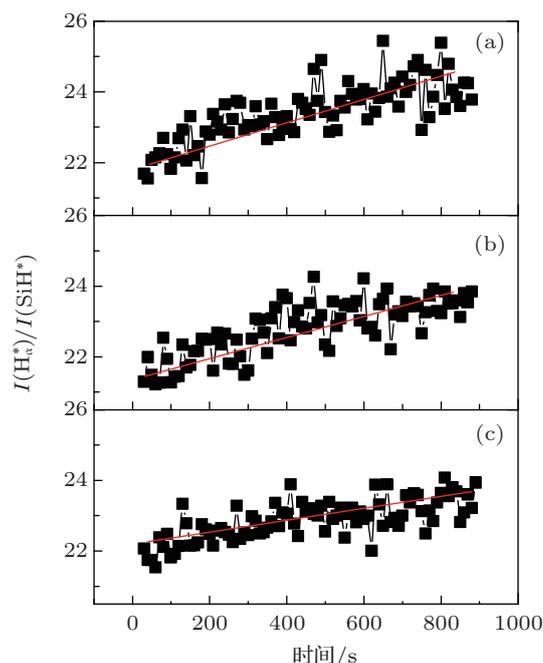


图 3 不同硅烷流量梯度法的辉光过程中 $I(\text{H}_\alpha^*)/I(\text{SiH}^*)$ 随时间的变化趋势 (a), (b), (c) 分别为硅烷流量梯度为 0, 0.5 和 1 sccm 的情况

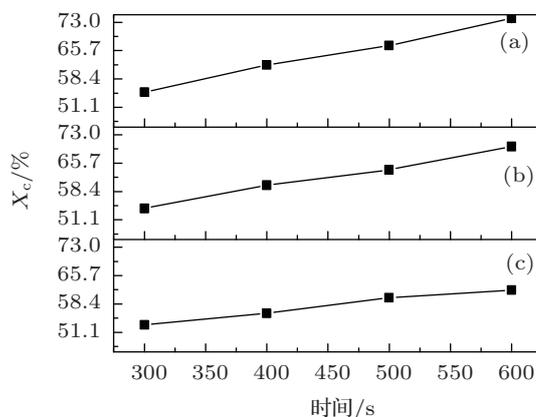


图 4 不同硅烷流量梯度法制备薄膜的纵向晶化率变化情况 (a), (b), (c) 分别为硅烷流量梯度为 0, 0.5 和 1 sccm 的情况

3.2 氢气流量梯度法

为了更深入地了解氢气流量变化所带来材料

纵向结构的变化情况, 实验研究中分别通过增加和减小氢气流量来增加和减小氢稀释. 在制备高速微晶硅薄膜的过程中, 氢气流量相对于硅烷流量要大很多, 因此调控氢气流量相对于调控硅烷流量要更容易. 首先采用 100 s 步长、步数为 4 步、初始氢气流量为 290 sccm、流量梯度为 10 sccm 的方法, 来分别增加和减小氢气流量对辉光过程进行调控. OES 在线监测结果如图 5—7 所示.

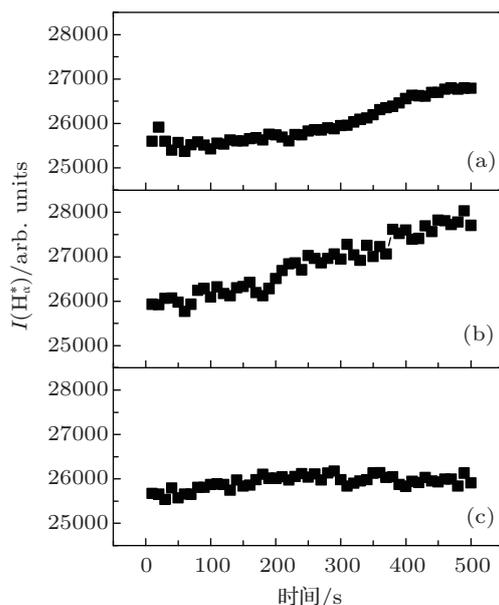


图 5 不同氢气流量梯度法辉光过程中 $I(\text{H}_\alpha^*)$ 随时间的变化趋势 (a), (b), (c) 分别为氢气流量梯度为 0, -10 和 10 sccm 的情况

由图 5(a) 可知, 在氢气流量不变的情况下, 随着沉积过程的进行, $I(\text{H}_\alpha^*)$ 逐渐变大, 这与图 1 结果一致. 由图 5(b) 和 (c) 可看出, 当氢气流量减小时, $I(\text{H}_\alpha^*)$ 增加的幅度更大; 而当氢气流量增加时, $I(\text{H}_\alpha^*)$ 增加的趋势有所减缓. 分析可能是由以下的因素引起的: 在硅烷完全耗尽的情况下, 当减小氢气流量即减小气体总流量时, 等离子体电子温度增加, 会进一步增加氢气分子的分解率, 从而使得 $I(\text{H}_\alpha^*)$ 增加幅度更大; 而当增加氢气流量即增加气体总流量时, 等离子体电子温度减小, 会抑制因等离子体热辐射效应所引起的电子温度的变化, 从而使 $I(\text{H}_\alpha^*)$ 增加幅度有所减缓.

从图 6(b), (c) 可以看出, 当氢气流量逐渐减小时, 随着沉积时间的增长 $I(\text{SiH}^*)$ 下降的趋势并没有得到减缓; 而当氢气流量增加时, $I(\text{SiH}^*)$ 的值趋于稳定. 这可能是由以下因素引起的: 改变

氢气流量相比于改变硅烷流量, 对气体总流量的改变要大很多. 当减小氢气流量即减小气体总流量时, 会增加等离子体的电子温度, 氢气离解率增加, 使得原子氢数目变多, 促进了湮灭反应 $\text{SiH}_4 + \text{H} \rightarrow \text{SiH}_3 + \text{H}_2$ 的发生, 使得可以分解的硅烷分子数目变少, 且硅烷处于耗尽状态, 电子温度的变化对其分解影响不大, 故 $I(\text{SiH}^*)$ 值下降的趋势并没有得到遏制, 呈现图 6(b) 的结果. 而当增加氢气流量即增加气体总流量时, 会使得电子温度变小, 氢气分子离解率降低, 原子氢数目变少, 抑制了湮灭反应 $\text{SiH}_4 + \text{H} \rightarrow \text{SiH}_3 + \text{H}_2$ 的发生, 从而使得可以分解的硅烷分子数目变多, 有效地抑制 $I(\text{SiH}^*)$ 逐渐减小的趋势, 使 $I(\text{SiH}^*)$ 的值趋于稳定, 如图 6(c) 所示.

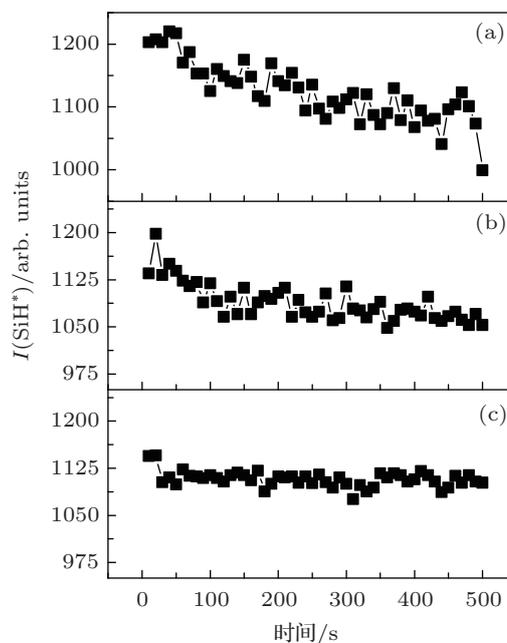


图 6 不同氢气流量梯度法辉光过程中 $I(\text{SiH}^*)$ 随时间的变化趋势 (a), (b), (c) 分别为氢气流量梯度为 0, -10 和 10 sccm 的情况

结合图 5 和图 6 得到不同氢气流量梯度法辉光过程中 $I(\text{H}_\alpha^*)/I(\text{SiH}^*)$ 随时间的变化趋势. 由图 7(a) 可知, 当氢气流量保持不变时, $I(\text{H}_\alpha^*)/I(\text{SiH}^*)$ 逐渐增加, 对应的是薄膜的晶化率逐渐上升, 与图 3(a) 结果一致. 由图 7(b) 可知, 逐渐减小氢气流量并没有使得 $I(\text{H}_\alpha^*)/I(\text{SiH}^*)$ 随着沉积过程逐渐增加的趋势得到遏制; 由图 7(c) 可知, 逐渐增加氢气流量使得 $I(\text{H}_\alpha^*)/I(\text{SiH}^*)$ 随着沉积过程逐渐增加的趋势有所抑制.

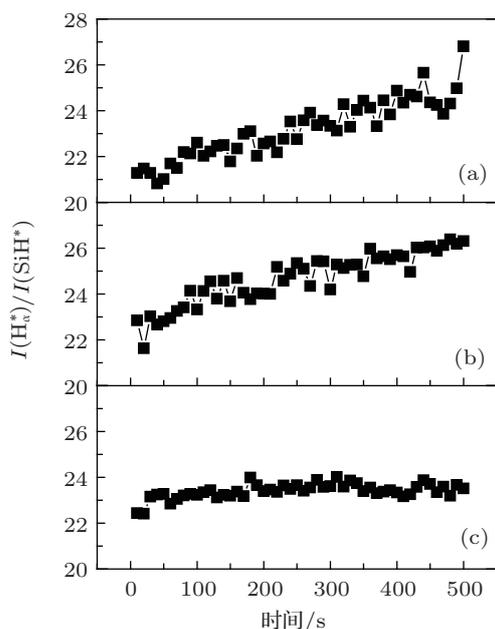


图7 不同氢气流量梯度法辉光过程中 $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ 随时间的变化趋势 (a), (b), (c) 分别为氢气流量梯度为 0, -10 和 10 sccm 的情况

实验中所采用的功率为 160 W, 此时硅烷处于耗尽区, 硅烷完全分解. 为了验证氢气流量的变化造成 $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ 与设想中的相反的原因. 我们增加功率, 使得硅烷处于过耗尽区. 在不同功率下, 通过氢稀释梯度来监测表征晶化率的 $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ 的变化趋势来说明, 如图 8 所示.

由图 8 可以看出, 在硅烷耗尽的辉光功率的条件下 $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ 随氢气流量的变化规律与图 7 中所监测的规律是一致的, 并且随着功率的增加, $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ 逐渐增加. 由图 8(a) 知, 在硅烷耗尽甚至过耗尽的情况下, 减少氢气流量减少了气体总流量, 使得气体分子密度减小, 电子与气体碰撞概率变小, 电子温度增大, 从而提高氢气分子的离解率, 并且促进了 $SiH_4 + H \rightarrow SiH_3 + H_2$ 的反应, 可以分解的硅烷分子变少, 从而使得 $I(SiH^*)$ 下降, 这两方面的因素导致 $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ 在沉积过程中逐渐增加的趋势更加明显. 由图 8(b) 知, 增加氢气流量增加了气体总流量, 使得气体分子密度增大, 电子与气体碰撞概率变大, 电子温度减小, 从而降低氢气分子的离解率, 减缓了 $I(H_{\alpha}^*)$ 逐渐上升的趋势; 并且抑制了 $SiH_4 + H \rightarrow SiH_3 + H_2$ 的反应, 可以分解的硅烷分子增多, 从而使得 $I(SiH^*)$ 下降的趋势有所减缓, 这两方面的因素导致 $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ 在沉积过程中逐渐增加的趋势得到抑制.

因此设定步长为 100 s 不变, 氢气流量梯度为

10 sccm, 分别增加和减小氢气流量来制备沉积时间分别为 240, 300, 360, 420 和 480 s 的系列薄膜. 采用 488 nm 波长的激光从膜面入射探测这些薄膜的晶化率, 结果如图 9 所示.

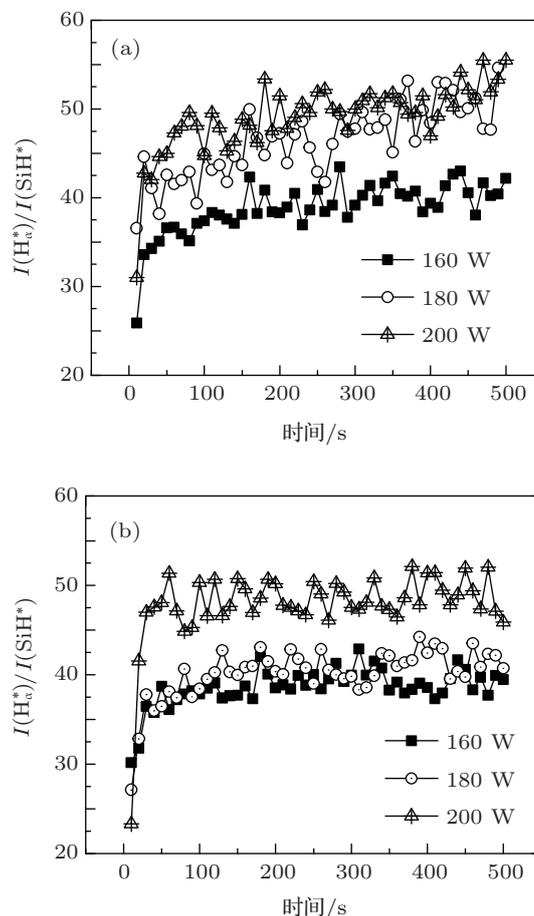


图8 不同功率条件下的氢气流量梯度辉光过程中 $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ 随时间变化的情况 (a) 氢气流量从 290 sccm 减小至 250 sccm; (b) 氢气流量从 290 sccm 增加至 330 sccm

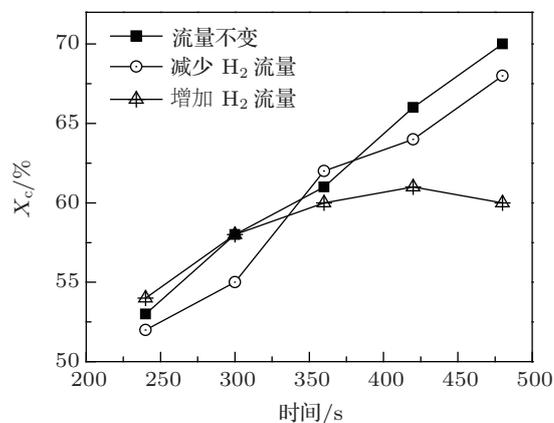


图9 不同氢气流量梯度法制备薄膜的纵向晶化率变化情况

由图 9 可知保持氢气流量为 290 sccm 不变情

况下,材料的纵向晶化率从52%增加到70%,说明所制备的材料的纵向均匀性较差.增加氢气流量制备的材料的纵向晶化率从53%增加到60%,纵向均匀性有了明显的改善.当减少氢气流量时,材料的纵向晶化率从53%增加到70%,可以看出纵向结构均匀性并没有得到很好的改善.

4 结论

本文通过氢稀释梯度,即硅烷浓度梯度和氢气流量梯度,改善高速沉积微晶硅薄膜的纵向均匀性.结合OES在线监测发光基团的稳态变化情况,分

析两种方法可行性的原因.通过硅烷浓度梯度法,使得材料的纵向晶化率从53%增加到62%,相对于常规方式下制备的材料的纵向的晶化率从55%到75%的演变,有了很大的改善.通过氢气流量梯度法,发现随着氢气流量的增大,反而使得材料的纵向均匀性得到了很好的改善.通过分析知硅烷处于耗尽区,氢的湮灭反应有很大的影响作用,并通过增大功率使得硅烷处于过耗尽区,进一步验证了这一结论.通过氢气流量梯度法,制备的材料的纵向晶化率从53%增大到60%,有了很明显的改善.为高速沉积微晶硅薄膜在电池中的应用奠定了基础.

-
- [1] Shah A V, Meirer J, Vallat-Sauvain E, Wyrsh N, Kroll U, Droz C, Graf U 2003 *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **78** 469
- [2] Matsuda A 2004 *J. Non-cryst. Solids* **338-340** 1
- [3] Guha S 2004 *Sol. Energy* **77** 887
- [4] Guo L, Kondo M, Fukawa M, Saitoh K, Matsuda A 1998 *Jpn. J. Appl. Phys.* **37** L1116
- [5] Kilper T, van den Donker M N, Carius R, Rech B, Bräuer G, Repmann T 2008 *Thin Solid Films* **516** 4633
- [6] van den Donker M N, Schmitz R, Appenzeller W, Rech B, Kessels W M M, van de Sanden M C M 2006 *Thin Solid Films* **511-512** 562
- [7] Yamauchi Y, Takatsuka H, Kawamura K, Yamashita N, Fukagawa M, Takeuchi Y 2005 *Tech. Rev. Mitsubishi Heavy Ind.* **42** 1
- [8] Sobajima Y, Higuchi T, Chantana J, Toyama T, Sada C, Matsuda A, Okamoto H 2010 *Phys. Status Solidi C* **7** 521
- [9] Gao Y T, Zhang X D, Zhao Y, Sun J, Zhu F, Wei C C, Chen F 2006 *Chin. Phys.* **15** 1110
- [10] Wronski C R, Collins R W 2004 *Sol. Energy* **77** 877
- [11] Lien S Y, Chang Y C, Cho Y S, Chang Y Y, Lee S J 2012 *IEEE Trans. Electron Dev.* **59** 1245
- [12] Hou G F, Xue J M, Guo Q C, Sun J, Zhao Y, Geng X H, Li Y G 2007 *Chin. Phys.* **16** 553
- [13] Du C C, Wei T C, Chang C H, Lee S L, Liang M W, Huang J R, Wu C H, Shirakura A, Morisawa R, Suzuki T 2012 *Thin Solid Films* **520** 3999
- [14] Fukuda Y, Sakuma Y, Fukai C, Fujimura Y, Azuma K, Shirai H 2001 *Thin Solid Films* **386** 256
- [15] Zhang X D, Zhao Y, Zhu F, Wei C C, Wu C Y, Gao Y T, Hou G F, Sun J, Geng X H, Xiong S Z 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 445 (in Chinese) [张晓丹, 赵颖, 朱峰, 魏长春, 吴春亚, 高艳涛, 侯国付, 孙建, 耿新华, 熊绍珍 2005 物理学报 **54** 445]
- [16] Feitknecht L, Meier J, Torres P, Zürcher J, Shah A 2002 *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **74** 539

Analysis on steady plasma process of high-rate microcrystalline silicon by optical emission spectroscopy*

Fang Jia Li Shuang-Liang Xu Sheng-Zhi Wei Chang-Chun
Zhao Ying Zhang Xiao-Dan†

(Key Laboratory of Photo-Electronic Thin Film Devices and Technique of Tianjin, Key Laboratory of Photo-Electronic Information Science and Technology of Ministry of Education, Institute of Photo-Electronic Thin Film Devices and Technique, Tianjin 300071, China)

(Received 1 February 2013; revised manuscript received 22 May 2013)

Abstract

The ratio of $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$, obtained from the real time optical emission spectroscopy (OES) measurement in the high-rate microcrystalline silicon deposition process, as a function of time is used to analyze the cause of increasing crystallinity along the growth direction. Hydrogen dilution gradient method which means silane concentration gradient and hydrogen flow gradient method is adopted to improve vertical structure uniformity of the material. High-quality microcrystalline material around 53%–62% of X_c can be prepared through silane concentration gradient compared with 55%–75% of X_c prepared in the traditional method. In the silane depleted cases, by increasing the hydrogen flow the longitudinal uniformity of the material can be effectively improved. The vertical crystallinity around 53%–60% can be obtained. This is mainly due to the increase of the hydrogen flow that makes the collision probability increased, as a result, electron temperature of plasma reduced. Thus, the decomposition of hydrogen decreases and the reaction of hydrogen annihilation is suppressed. At the same time, the influence of back diffusion of SiH_4 is suppressed. The gradually increasing trend of the ratio of $I(H_{\alpha}^*)/I(SiH^*)$ is controlled during the deposition of microcrystalline silicon film.

Keywords: optical emission spectroscopy, high-rate deposition, microcrystalline silicon, vertical structure uniformity

PACS: 81.15.Gh, 73.61.Jc, 79.60.Dp

DOI: 10.7498/aps.62.168103

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2011CBA00706, 2011CBA00707), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2013AA050302), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60976051), the Science and Technology Support Program of Tianjin, China (Grant No. 12ZCZDGX03600), the Major Science and Technology Support Project of Tianjin, China (Grant No. 11TXSYGX22100), and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20120031110039).

† Corresponding author. E-mail: xdzhang@nankai.edu.cn