

化学气相沉积中影蔽效应对硅薄膜表面形貌和微结构的影响*

张海龙 刘丰珍[†] 朱美芳

(中国科学院大学材料科学与光电技术学院, 北京 100049)

(2014年3月28日收到; 2014年5月6日收到修改稿)

采用斜入射热丝化学气相沉积技术(OAD-HWCVD),研究了气流入射角度(θ)对氢化非晶硅(a-Si:H)薄膜表面和微结构的影响.实验发现,薄膜厚度为1 μm 时,均方根粗糙度与 $\tan\theta$ 成指数关系;在入射角度为 75° 时,薄膜表面由自仿射表面转变为mound表面.采用拉曼谱和红外谱表征了硅薄膜的微结构随气流入射角度的变化.在薄膜转变为mound表面生长之前,随入射角度的增加,准局域影蔽效应使得薄膜中微空洞的数目及尺寸增加,导致薄膜微结构因子升高、致密度下降、薄膜质量变差.在薄膜转变为mound表面生长之后,非局域的影蔽效应导致大尺度的空洞,同时薄膜中以 Si-H_n ($n \geq 2$)形式存在的氢增多.本文以非晶硅薄膜为例,结合标度理论,分析了薄膜生长过程中的表面形貌和微结构与影蔽效应的关系.

关键词: 影蔽效应, mound表面, 微空洞, 表面形貌生长

PACS: 73.61.Jc, 68.55.-a, 61.43.Dq

DOI: 10.7498/aps.63.177303

1 引言

硅薄膜(例如非晶硅、微晶硅)是光伏电池、大面积平面显示和微机电系统等领域广泛应用的光电薄膜材料.在薄膜生长过程中,精确地控制表面形貌和微结构的演化,对于实现与保证材料的性能是至关重要的.硅薄膜通常采用等离子体增强化学气相沉积(PECVD)和热丝化学气相沉积(HWCVD)等技术制备.薄膜制备时,衬底温度一般低于 300°C ,而沉积气压可能是从十几帕到上千帕,薄膜生长处于高的非平衡态条件下^[1],气相中基元频繁碰撞,形成多种生长前驱物,以不同的能量和角度投射到生长表面实现薄膜生长^[2-4],生长条件改变会造成所制备的薄膜结构具有很大的差别.

已有薄膜生长过程的研究指出,在入射粒子大

角度入射的情况下,薄膜生长过程存在非局域影蔽效应,使薄膜表面的生长指数 $\beta > 0.5$,表面形貌的功率谱密度(PSD)函数出现象征mound表面的特征峰,此时薄膜表面不再是自仿射表面,不能够用KPZ模型来描述薄膜生长过程^[5-8].影蔽效应的存在使得薄膜中产生微空洞,薄膜的致密度降低,这在溅射和脉冲激光熔蒸等物理气相沉积技术制备氧化物薄膜的研究中已经有比较明确的结论^[9,10].由于化学气相沉积(CVD)涉及到复杂的气相和表面反应过程,增加了对影蔽效应作用的认识难度.我们前期对CVD技术制备氢化硅薄膜的研究发现^[11],影蔽效应与薄膜厚度、粒子的入射状态、氢的引入和沉积气压等诸多因素有关;由于影蔽效应的存在,随着硅薄膜厚度增加,PSD函数逐渐显现特征峰,薄膜表面转变为mound表面;在气压较高的时候,PSD函数的特征峰更早出现.这些研究对于认识CVD过程中的影蔽效应和薄膜生长

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2006CB202601, 2011CBA00705)和北京市科技计划(批准号: D121100001812003)资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: liufz@ucas.ac.cn

动力学过程有一定的帮助,但目前仍然比较欠缺系统的、细致的实验研究与分析.

对于氢化硅薄膜中的氢含量、氢的成键状态与薄膜的光电性质之间的关系等,目前已有共识,而影蔽效应对氢含量和薄膜微结构的影响并不清楚.考虑到影蔽效应与粒子入射角度有关,因此,本文将主要研究基元入射角度与薄膜表面形貌演化、氢含量和微结构的关系.这将有助于我们认识薄膜生长的微观过程,完善薄膜生长模型,为制备致密、均匀和优质的薄膜提供指导依据,也可以对纳米棒等新概念太阳能电池制备条件的优化提供思路^[12].考虑到 mound 结构的形成还受到黏附系数、扩散长度、相变等影响,为了避免给影蔽效应研究造成难度,我们通过控制生长条件,使制备的薄膜都是非晶.

2 实 验

结合斜入射沉积(OAD)技术和HWCVD技术制备了硅薄膜,原理如图1所示.入射气流方向与衬底法向的夹角为 θ , θ 可在 0° — 90° 之间调节,衬底架以衬底法向为轴旋转,反应气体(纯硅烷)经高温钨丝(1850 $^\circ\text{C}$)分解为活性生长基元,以一定的发散角喷射到基片上实现薄膜沉积.热丝到衬底中心的距离为6.5 cm.为了实现对生长基元入射角的有效控制,一方面设计合理的热催化器结构以减小气流发散度,同时沉积气压设为0.3 Pa,在此气压下,基元平均自由程远大于热丝到衬底的距离,到达衬底表面的活性基元主要为热丝分解硅烷产生的Si和H,避免了气相反应引起分析的复杂性.

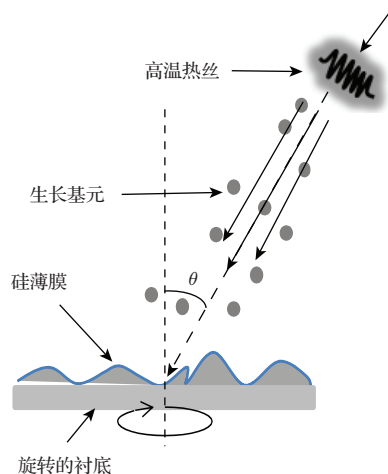


图1 OAD-HWCVD原理图

实验中,衬底采用Corning eagle 2000玻璃和双面抛光硅片,衬底温度固定为100 $^\circ\text{C}$,衬底旋转速度为16 r/min.在 θ 角为 0° , 45° , 60° , 75° 和 82° 下制备硅薄膜,硅薄膜厚度为1 μm 左右. Raman(Horiba JY HR800)散射谱测试采用的激励波长为514 nm,在非晶硅薄膜中的透入深度是50—100 nm.采用AFM(岛津SPM9600)Tapping模式获取硅薄膜表面形貌,扫描范围为2 $\mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$.通过红外测试(FT-IR Nicolet 7200)得到薄膜的氢含量及微结构信息,对红外干涉吸收曲线进行拟合得到薄膜折射率.

3 实验结果及分析

3.1 入射角度对薄膜表面形貌的影响

图2(a)—(e)为不同气流入射角度下制备的硅薄膜AFM表面形貌图像.可看到,垂直入射($\theta = 0^\circ$)下制备的薄膜表面(a)比较平滑,颗粒结构小.在 $\theta < 75^\circ$ 时(图2(a)—(c))随着 θ 增加,表面粗糙程度和结构的尺寸呈现缓慢增加的趋势.在 $\theta = 75^\circ$ 时表面起伏明显增加,出现几十到近百纳米大小的团簇状丘堆结构,表明薄膜表面生长状态发生转变.图2(e)中嵌入的图片是 $\theta = 82^\circ$ 时制得薄膜的截面SEM图,薄膜呈分立的纳米棒结构,这与掠角入射技术制备纳米棒的现象是一致的.图2(f)给出薄膜表面对应的均方根粗糙度(σ_{rms})随角度的变化,在 θ 比较小时, σ_{rms} 随 θ 缓慢增加,当 $\theta > 60^\circ$ 时, σ_{rms} 迅速增加,与AFM图像的变化趋势一致.

为进一步了解薄膜表面结构的特征,对图2中表面各点的高度数据计算得到PSD曲线 $p(k)$,如图3所示. $p(k)$ 反映不同空间频率的结构成分(波数 k)在表面轮廓上所占比重,曲线的特征峰表明在实空间中表面有准周期的mound结构,相应的表面被称为mound表面.图3显示,在 0° 时, $p(k)$ 呈现单调下降的趋势.随 θ 的增加,在较低的波数 k 范围内, $p(k)$ 曲线出现平台(45° , 60°),当 θ 为 75° 和 82° 时, $p(k)$ 曲线出现一个特征峰.小 θ 时单调变化的PSD曲线,对应了自仿射表面的特征.在 $\theta = 75^\circ$ 时特征峰的出现,表明薄膜表面转变为mound表面,验证了图2(d), (e)中的薄膜形貌的变化.

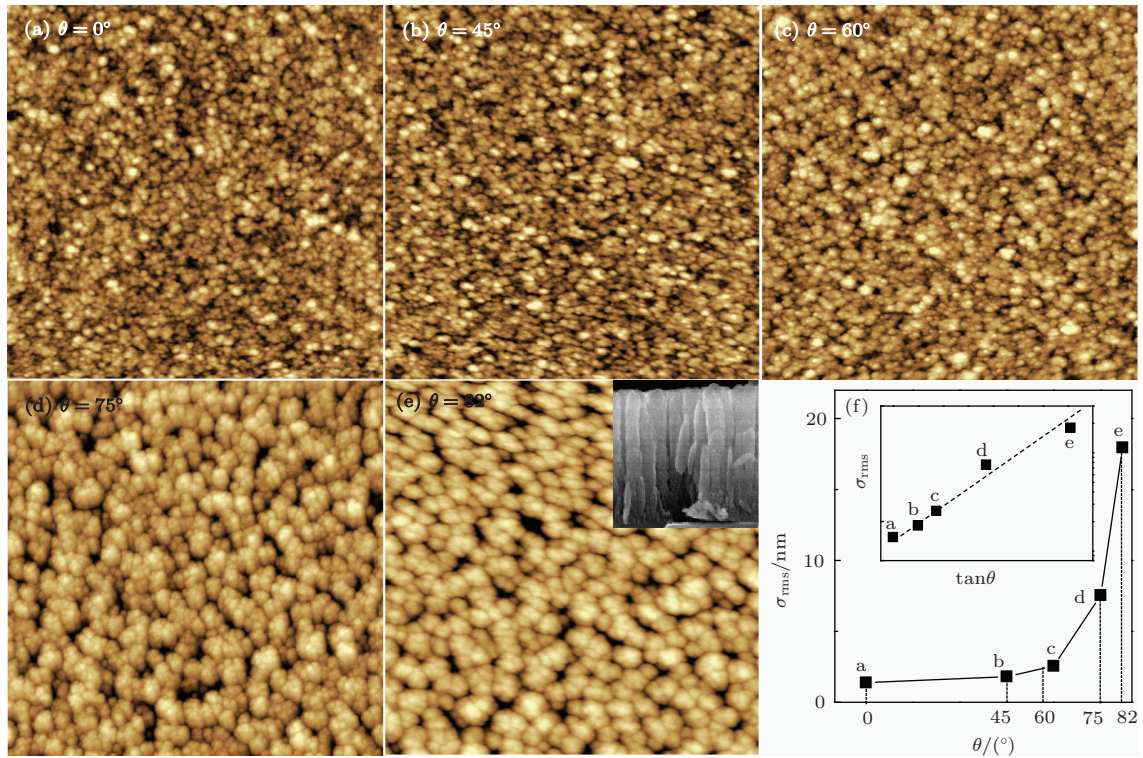


图2 (a)–(e) 薄膜形貌图像和截面 SEM 图 (内插图); (f) σ_{rms} 和半对数坐标下的 $\sigma_{\text{rms}}-\tan \theta$ 曲线 (内插图)

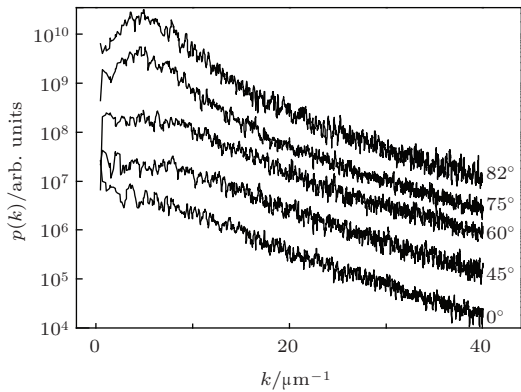


图3 薄膜表面形貌的 PSD 曲线

mound 结构的形成和演化是薄膜生长中影蔽效应的结果, 而粒子的非垂直入射是造成影蔽效应的根源. 影蔽效应是指, 粒子以大角度入射时, 薄膜表面的突起结构周围会形成生长基元的弹道阴影区, 因此, 突起部分接收到较多的粒子形成峰, 阴影区接收较少或无法接受粒子而形成谷或微空洞, 即, 薄膜表面各点接收到的粒子数目与入射角度和表面形貌相关. 图 4 给出了影蔽效应的示意图, 其中倾斜角 α 是表面上相距为 r 、高度差为 Δh 的两点间连线与衬底平面的夹角, 粒子入射角度为 θ , 可见, 当 $\theta > 90^\circ - \alpha$ (即 $\theta + \alpha > 90^\circ$) 时, 较低点 (如

图中 B 点) 位于较高点 (如图中 A 点) 的弹道阴影区域内, 两点间发生影蔽, 影蔽长度 $L = \Delta h \cdot \tan \theta$.

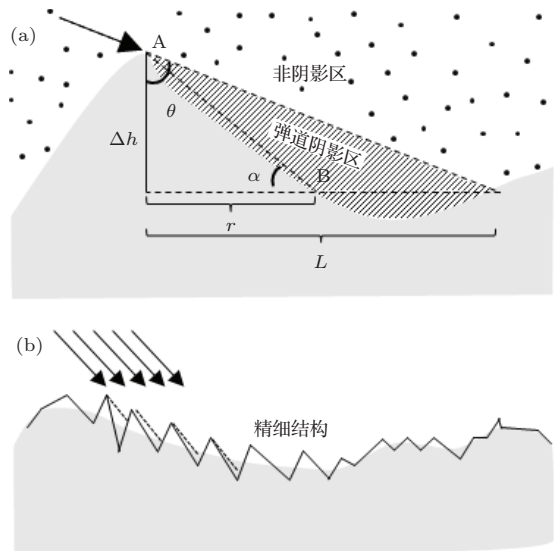


图4 影蔽效应示意图 (a) 影蔽效应的形成; (b) 表面精细结构处的影蔽效应

首先讨论入射角度对表面均方根粗糙度的影响. 将图 2 (f) 中的横坐标变为 $\tan \theta$ 并重新绘图, 如图 2 (f) 的插图所示, 可见 σ_{rms} 基本随 $\tan \theta$ 指数变化, 即, $\sigma_{\text{rms}}(\theta) \sim D^{\tan \theta}$ (D 为常数). 根据薄膜表面生长动力学标度理论, σ_{rms} 与薄膜厚度 d 满足指

数关系, 考虑到入射角度不同, 并假设在同一入射角度的生长过程中生长指数 $\beta(\theta)$ 近似不变, 有 $\sigma_{\text{rms}}(\theta, d) = Cd^{\beta(\theta)}$ (C 为常数). 比较以上关系式, 可推出 $\beta(\theta)$ 与 $\tan \theta$ 之间具有线性关系 $\beta(\theta) \sim \tan \theta$. 这说明非垂直入射改变了表面生长指数, 因此 $\tan \theta$ 可表征影蔽效应对薄膜表面演化的影响, 由于影蔽长度 $L = \Delta h \cdot \tan \theta$, 所以表面起伏 Δh 越大, $\tan \theta$ 越大, 则影蔽长度越长, 即表面粒子分布不均匀性越强. 需要指出的是, 在 θ 接近 90° 时, $\tan \theta$ 非常大, 而 β 的取值一般为 $0-1$, 因此, 此时 $\beta(\theta) \sim \tan \theta$ 不再成立, $\beta(\theta)$ 的变化形式需要进一步研究, 本文不做深入讨论.

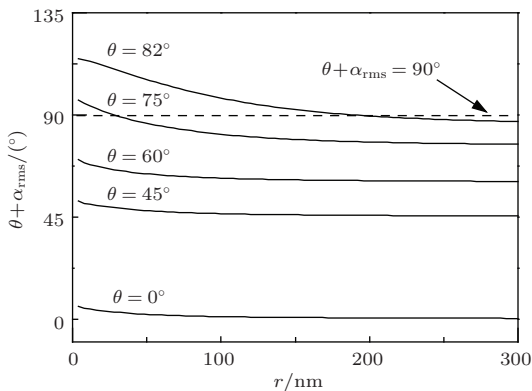


图5 薄膜表面的 $\theta + \alpha_{\text{rms}}(r)$ 曲线

下面讨论影蔽效应与薄膜表面演化过程的联系. 根据 AFM 图像, 统计得到均方根倾斜角随距离的变化 $\alpha_{\text{rms}}(r)$. 绘制 $\theta + \alpha_{\text{rms}}(r)$ 随 r 的变化曲线如图 5 所示. 图中虚线对应 $\theta + \alpha_{\text{rms}}(r) = 90^\circ$. 图 5 显示, 对于小的 θ , 只有在 r 很小时, $\alpha_{\text{rms}}(r) > 0$, 当 r 较大时, $\theta + \alpha_{\text{rms}}(r)$ 几乎与 θ 相等, 这表明此时影蔽只可能发生在距离较近的点之间. $\theta + \alpha_{\text{rms}}(r)$ 曲线随 θ 增加而整体上移, 这表示 θ 较大时薄膜表面上更易发生影蔽. 当 $\theta \geq 75^\circ$ 时, 曲线与虚线相交, 表明此时表面上影蔽效应普遍存在.

在表面平整的基底上生长薄膜, 初期成核所形成的细小结构是薄膜形貌演化的起点. 之后, 随着沉积时间的增加, 表面发生粗糙化. 当 θ 很小时, 粒子接近垂直入射, 影蔽效应几乎不存在, 此时表面是自仿射表面, 可用 KPZ 模型来描述薄膜形貌演化过程. 自仿射表面的粗糙度是以较低的生长指数 ($\beta < 0.5$) 缓慢增加的, 因此表面图 2(a) 的粗糙度较小. 对于 θ 为 45° 或 60° 的情况, 当 $\alpha(r)$ 分别大于 45° 或 30° 时可发生影蔽, 由于薄膜粗糙度较低, 对

如图 4(b) 所示的表面精细结构, 只有在 r 很小时, 倾斜角 $\alpha(r)$ 才有取值. 图 5 中 $\theta + \alpha_{\text{rms}}(r)$ 曲线在 r 较小时的上抬, 说明影蔽效应主要发生在短距离内, 此时, 影蔽长度 L 大约是几个到十几个原子尺度, 影蔽效应是准局域的, 由于薄膜生长还会受到扩散等平滑作用的影响, 此时的薄膜表面仍近似为自仿射表面.

在 $\theta \geq 75^\circ$ 时, 较小的 α 即可满足发生影蔽的条件 $\alpha + \theta > 90^\circ$, 从而在较小的表面起伏下即可实现较长的影蔽长度, 此时表面经过短时间的生长, 即可产生生长距离的非局域影蔽效应. 图 5 中, 75° 和 82° 对应的影蔽长度分别是 28 nm 和 180 nm, 超过扩散平滑作用的尺度, 此时影蔽效应是决定表面形貌的主要因素, 从而造成薄膜粗糙度进一步升高和自仿射表面到 mound 表面的转变. 根据图 5 可知, 同薄膜厚度下, 导致薄膜表面类型发生转变的角度阈值 θ_c 在 $60^\circ-75^\circ$ 之间.

对于入射角度在 θ_c 阈值附近的情况, 考虑到表面形貌和影蔽效应的正反馈作用, 非局域影蔽效应的发生和自仿射到 mound 表面的转变, 是在薄膜达到一定厚度之后出现的, 这意味着通过控制条件可以抑制这种反馈作用、延缓 mound 出现.

3.2 粒子入射角度对微结构的影响

图 6 给出入射角 θ 为 0° , 60° 和 82° 条件下制备的硅薄膜的拉曼散射谱. 可以看到, 三个样品拉曼谱横光学模 (TO 模) 均在 480 cm^{-1} 处, 这表明薄膜都是非晶, 入射角的差异不影响薄膜相结构. 随 θ 的增加, TO 模半高宽增大, 横声学模 (TA 模, 170 cm^{-1}) 增强, 表明斜入射增加了薄膜 Si-Si 网络的无序度, 这应当是准局域的影蔽效应改变薄膜中原子排布的结果.

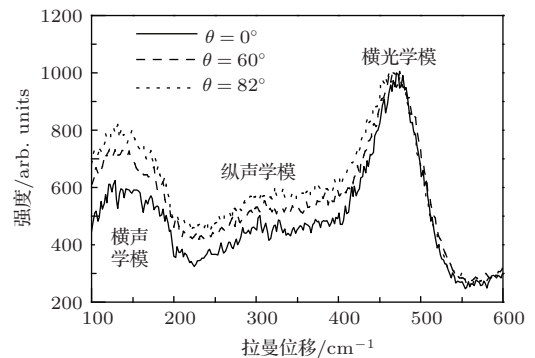


图6 拉曼散射曲线

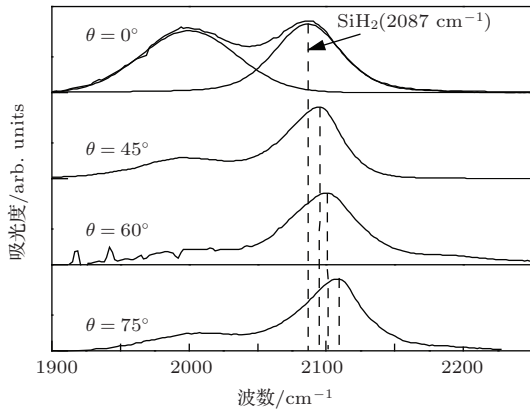


图7 硅薄膜红外吸收谱的Si-H_n伸缩模吸收谱

在优质硅薄膜材料制备中, 氢在缓和硅网络结构应力和钝化悬键等方面有重要的作用^[13], 通过分析硅薄膜红外吸收谱中Si, H原子的键合组态, 可以得到关于薄膜微结构的有用信息. 一般认为, 非晶硅薄膜红外谱中2000 cm⁻¹的低位伸缩模(LSM)对应于体的Si-H₁, 反映薄膜中较致密的部分; 2060—2160 cm⁻¹的高位伸缩模(HSM)与薄膜中空洞内表面的键合氢有关, 主要包括Si-H₂(2090—2120 cm⁻¹)和Si-H₃(2120—2150 cm⁻¹)^[14-17]. 图7给出了1900—2250 cm⁻¹范围的红外谱. $\theta = 0^\circ$ 时, HSM主要为SiH₂伸缩模(2087 cm⁻¹); 之后随 θ 增加, HSM峰位向高波数偏移, 吸收峰分布变宽, 包含多种吸收模式, 表明薄膜中高氢的硅氢键增多.

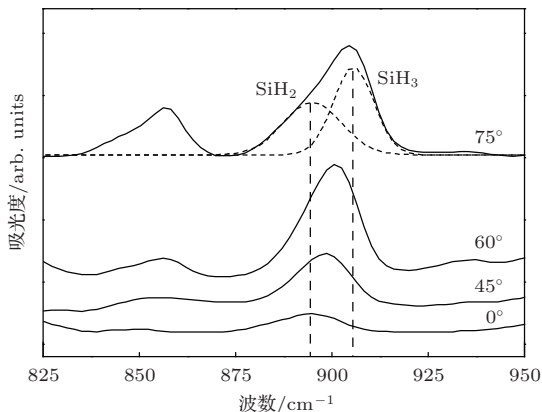


图8 硅薄膜红外吸收谱的Si-H₂和Si-H₃剪切模/弯曲模吸收谱

图8给出了825—950 cm⁻¹范围的红外谱, 一般认为该范围内的吸收对应Si-H₂和Si-H₃振动吸收^[18]. 可见, 随 θ 增加, Si-H_n($n = 2, 3$)振动吸收不断增强, 且吸收峰向高波数移动. 由图7可看出

$\theta = 0^\circ$ 时HSM中只包含Si-H₂吸收(2087 cm⁻¹), 因此可认为图8中 $\theta = 0^\circ$ 时890 cm⁻¹处的吸收峰与SiH₂有关, 当 θ 增加时, 905 cm⁻¹处吸收峰的出现和增强是由于SiH₃的出现造成的. 这进一步表明, 随入射角度增加, 影蔽效应导致薄膜中键合的氢向富氢结合模式转变.

为了比较入射角度对薄膜结构的影响, 分别根据红外谱中的伸缩模吸收和摇摆模吸收计算了薄膜微结构因子 R ($R = I_{\text{HSM}} / (I_{\text{HSM}} + I_{\text{LSM}})$, I_{HSM} , I_{LSM} 分别为相应吸收模式的积分强度)^[15]和氢含量 C_{H} ^[18], 根据有效介质近似和薄膜折射率计算了薄膜的空洞体积分数 X_{V} ($X_{\text{V}} = \text{薄膜中的空洞体积} / \text{薄膜总体积}$), 各值均在表1中给出.

表1 硅薄膜样品的微结构因子(R)、折射率(n_{film})、空洞体积分数(X_{V})和氢含量(C_{H})

$\theta / (^\circ)$	$R / \%$	n_{film}	X_{V}	$C_{\text{H}} / \%$
0	50.6	>3.30	<0.03	8.1
45	69.7	3.02	0.15	10.5
60	82±5	2.73	0.27	11.9
75	81±3	2.33	0.44	12.4

从表1可以看出, 随入射角度的增加, n_{film} 逐渐下降, X_{V} 升高, 表明薄膜致密度降低, 空洞或空隙增多. 结构因子 R 先随 θ 的增加而增加, 在 $\theta > 60^\circ$ 时, 不再升高. X_{V} 和 R 都与薄膜的致密度有关, 但由于HSM主要对应的是空洞表面的硅氢成键, 因此 R 主要反映薄膜内微空洞表面积的变化. 在 $\theta < 60^\circ$ 时, 薄膜表面的精细结构导致准局域影蔽效应, 此时, θ 的增加使得微空洞的数目和总表面积增加, 从而导致了HSM组态和 R 值的增加. 而在 $\theta > 60^\circ$ 时, mound表面生长中存在强烈的非局域影蔽效应, 导致薄膜中出现大尺寸空洞或空隙, 此时总的微空洞表面积不再上升, 因此不增加HSM组态的吸收. 图8中 $\theta = 60^\circ$ 和 75° 时, 900 cm⁻¹附近吸收峰面积相近也证明了这一点.

以上实验结果表明, 基元的非垂直入射, 特别是大入射角带来的影蔽效应, 是mound结构形成、薄膜中高氢的硅氢键增多和薄膜致密度下降的基本原因. 在CVD制备硅薄膜的技术中, 气流的引入方式和高沉积气压条件下基元的随机碰触, 导致反应基元的入射角度有一定分布. 其中大角度入射的基元容易引起影蔽效应. 因此, 根据薄膜制备的具体需求, 可通过控制生长条件, 减小基元入射角

的分布范围,减少斜入射基元的比重,尽量避免出现大入射角度的情况,以减弱生长过程中的影蔽效应.同时通过提高温度、增强基元表面扩散能力等措施减弱准局域影蔽效应带来的粗糙作用,可以延缓或抑制 mound 表面形成,以获得良好的表面形貌和较致密的薄膜.另一方面,我们也注意到,可利用影蔽效应来发展其新的应用.可选择优化生长条件,以构造具有陷光特性的表面结构,这在光伏电池方面有明确的应用价值.在大入射角条件下,可制备定向排列的纳米棒组合,这在光电子器件、传感器等方面也有潜在的应用前景.

4 结 论

通过改变 OAD-HWCVD 中气流入射角度 θ ,研究了非晶硅薄膜表面生长的演化过程.发现薄膜均方根粗糙度 σ_{rms} 基本上随 $\tan \theta$ 指数增加.随 θ 增加,薄膜致密度和有序度下降,键合氢向富氢结合模式转变.存在一个入射角度的阈值 θ_c .在 $\theta < \theta_c$ 情况下,薄膜表面是自仿射表面,随 θ 增加,表面生长中的局域影蔽效应促进了微空洞的形成,红外谱中结构因子 R 增加;当 θ 在 θ_c 附近时,薄膜粗糙化和影蔽效应增强,随薄膜厚度增加,两者的正反馈作用使得局域影蔽效应转变为非局域影蔽效应;在 $\theta > \theta_c$ 时,薄膜表现为 mound 表面生长,非局域影蔽效应使薄膜中生成较大尺寸的空洞或空隙,在掠角条件下 ($\theta = 82^\circ$),观测到了纳米棒结构的形成.因此,对于 CVD 制备技术,需要通过适当控制沉积条件,如降低气流发散、避免基元大角度入射、提高温度、改变生长基元类型等手段,抑制非局域影蔽效应或局域影蔽效应到非局域影蔽效应的转变,来减缓 mound 表面的形成,以获得优质的薄膜.影蔽效应可以导致新的结构形貌,利用影蔽效应来发展其新的应用是有待进一步研究的方向.

参考文献

- [1] Fang J, Li S L, Xu S Z, Wei C C, Zhao Y, Zhang X D 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 168103 (in Chinese) [方家, 李双亮, 许盛之, 魏长春, 赵颖, 张晓丹 2013 物理学报 **62** 168103]
- [2] Lu T M, Zhao Y P, Drotar J T, Karabacak T, Wang G C 2003 *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **749** 3
- [3] W. G. J. H. M. van Sark, L. Korte, F. Roca (Eds.) 2012 *Physics and Technology of amorphous-Crystalline Heterostructure Silicon solar cells* (Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag) p44
- [4] Tonokura K, Inoue K, Koshi M 2002 *J. Non-Cryst. Solids* **299–302** 25
- [5] Karabacak T, Guclu H, Yuksel M 2009 *Phys. Rev. B* **79** 195418
- [6] Karunasiri R P U, Bruinsma R, Rudnick J 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 788
- [7] Pelliccione M, Lu TM 2008 *Evolution of Thin Film Morphology* (New York: Springer) p47
- [8] Pelliccione M, Karabacak T, Lu TM 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 146105
- [9] Hasegawa K, Fujino K, Mukai H, Hayashi K, Sato K, Honjo S, Sato Y, Ishii H, Iwata Y 1996 *Appl. Supercond.* **4** 487
- [10] You D J, Choi S K, Han H S, Lee J S, Lim C B 2001 *Thin Solid Films* **401** 229
- [11] Liu F Z, Li C W, Zhu M F, Gu J H, Zhou Y Q 2010 *Phys. Status Solidi (C)* **7** 533
- [12] Jia Z N, Zhang X D, Liu Y, Wang Y F, Fan J, Liu C C, Zhao Y 2014 *Chin. Phys. B* **23** 046106
- [13] Li J, Luo C, Meng Z G, Xiong S Z, Guo H W, Kwok H S 2013 *Chin. Phys. B* **22** 105101
- [14] Smets A H M, Matsui T, Kondo M 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 033506
- [15] Peng W B, Liu S Y, Xiao H B, Zhang C S, Shi M J, Zeng X B, Xu Y Y, Kong G L, Yu Y D 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 5716 (in Chinese) [彭文博, 刘石勇, 肖海波, 张长沙, 石明吉, 曾湘波, 徐艳月, 孔光临, 俞育德 2009 物理学报 **58** 5716]
- [16] Smets A H M, Kessels W M M, Sanden M C M 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 1547
- [17] Kageyama S, Akagawa M, Fujiwara H 2012 *J. Non-Cryst. Solids* **358** 2257
- [18] Brodsky M H, Cardona M, Cuomo J J 1977 *Phys. Rev. B* **16** 3556

Influence of shadowing effect on morphology and microstructure of silicon thin film in chemical vapor deposition*

Zhang Hai-Long Liu Feng-Zhen[†] Zhu Mei-Fang

(College of Materials Science and Opto-electronic Technology, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(Received 28 March 2014; revised manuscript received 6 May 2014)

Abstract

Influences of gas incident angle (θ) on surface morphology and microstructure of hydrogenated amorphous silicon (a-Si:H) thin films are investigated, which were grown using an oblique angle hot wire chemical vapor deposition (OAD-HWCVD) technique. An exponential relationship between the $\tan\theta$ and RMS roughness is observed. The film surface morphology transforms from a self-affine surface into a mounded surface when the incident angle is larger than a critical angle θ_c ($60^\circ < \theta_c < 75^\circ$). Influences of θ on the microstructural properties of silicon thin films are characterized using Raman scattering and FT-IR measurements. As $\theta < \theta_c$, owing to the quasi-local shadowing effect, increasing θ increases the quantity and size of micro-voids, leading to the decrease of film density and quality. For $\theta > \theta_c$, the nonlocal shadowing effect causes the formation of large voids or cracks and the proportion of multi-hydride (SiH_n , $n \geq 2$) increases. Combined with the scaling theory, the relationship between the shadowing effect and the surface morphologies and microstructures of amorphous silicon thin films is discussed.

Keywords: shadowing effect, mounded surface, micro-voids, surface morphology evolution

PACS: 73.61.Jc, 68.55.-a, 61.43.Dq

DOI: 10.7498/aps.63.177303

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant Nos. 2006CB202601, 2011CBA00705), and the Beijing Municipal Science and Technology Project (Grant No. D121100001812003).

[†] Corresponding author. E-mail: liufz@ucas.ac.cn