

Navorsings- en oorsigartikels

Reaktor-optimering vir die vervaardiging van homogene grootoppervlak amorfse silikon-sonselle

J.D. Saunderson

Departement Fisika, Randse Afrikaanse Universiteit, Posbus 524, Aucklandpark, 2006

Ontvang 10 Oktober 1997; aanvaar 6 November 1997

UITTREKSEL

Resultate word aangebied betreffende die optimering van die konfigurasie binne-in 'n grootoppervlak-loodsaanlegreaktor vir die vervaardiging van dunlagies gehidrogeneerde amorfse silikon (α -Si:H). Die basiese ontwerp van die groeireaktor word bespreek, en die korrelasie tussen die konfigurasie binne die groeireaktor en die homogeniteit van die materiaal word gedemonstreer. Daar word aangetoon dat die homogeniteit hoofsaaklik bepaal word deur die vorm van die antenne, die afstand tussen die antenne en die substraat, die rigting en posisionering van die gasinlaat en die verdunning van die reaksiegasse met waterstof. 'n Homogeniteitsfaktor van 2,5% is verkry oor 'n substraatoppervlakte van 320 mm x 300 mm.

ABSTRACT

Reactor optimisation for the production of homogeneous large area amorphous silicon solar cells on flexible substrates

Results are presented on the optimisation of the configuration of a large area pilot plant for the production of thin films of hydrogenated amorphous silicon (α -Si:H). The basic design of the reactor is discussed, and the correlation between the configuration inside the reactor and the resulting homogeneity of the material is demonstrated. It is indicated that the homogeneity is mainly determined by the shape of the antenna, the distance between the antenna and the substrate, the direction and position of the gas inlet and the dilution of the reactive gasses with hydrogen. A homogeneity factor of 2,5% was obtained across a substrate area of 320 mm x 300 mm.

INLEIDING

Ten spye van 'n aantal probleme wat met α -Si:H in fotovoltaïese toepassings ervaar word, word hierdie materiaal steeds as 'n "kampioen-materiaal" beskou.¹ Die probleme waarna verwys word, is die relatief lae seldoeltreffendhede en die foto-geïnduseerde degradasie van die materiaal² en selle.³ Indien hierdie probleme (of eerder fisiese verskynsels) egter in perspektief beskou word, blyk dit duidelik dat α -Si:H 'n sterk aanspraakmaker is op dié materiaal waarop 'n bekostigbare (in terme van die koste per watt) en lewensvatbare fotovoltaïese tegnologie gebaseer kan word. 'n Aantal van die voordeligste eienskappe van α -Si:H sluit in:⁴ lae vervaardigingskoste, kort energierugbetaaltyd, hoë optiese absorpsie en die aanpasbaarheid vir innoverende ontwerpe. Hierdie voordele van α -Si:H kan omgeskakel word in baie goedkoop fotovoltaïese stelsels.

In die vervaardiging van α -Si:H-toestelle is dit 'n eerste vereiste dat die vervaardigsisteem geoptimeer moet word vir die groei van homogene materiaal oor relatief groot oppervlaktes. In dié verband toon Sansonnens et al.⁵ aan dat die materiaal homogeen gegroei kan word indien glasstroke langs die substraat in die groeireaktor gebruik word. Hierdie opstelling gee aanleiding daartoe dat die versteuring in die elektriese veld naby die kante van die substraat uitgeskakel word, aangesien die diskontinuïteit by die rand van die substraat effektiel na die glasstroke verplaas word. 'n Homogeniteitsfaktor H van 5% is sodoende gedokumenteer vir 'n glassubstraat met afmetings van 350 mm x 450 mm. Aangesien die meeste navorsing en ontwikkeling op amorfse silikon egter in laboratoriumskaalreaktore onderneem word, waar die grootte van die substraat van die orde van ongeveer 10 mm x 10 mm is, is daar weinig

literatuur beskikbaar oor die optimering van groeireaktore ten opsigte van homogeniteit.

EKSPERIMENT

Ten einde grootoppervlak- α -Si:H-selle te vervaardig, is 'n loadsaanleg-reaktor ontwikkel wat dunlagies kan groei deur middel van 'n gloei-ontladingsmetode. Die lagies word gegroei deur 'n mengsel van 40% silaan (SiH_4) in waterstof (H_2) te gebruik, en gasfase-dotering word bewerkstellig deur diboraan (B_2H_6) of fosfien (PH_3) onderskeidelik by die mengsel te voeg. Die plasma word onderhou deur 'n 13,56 MHz radiofrekwensie (RF)-stralingsbron. Die sisteem is ontwerp om beide standaard glassubstrate en polimeersubstrate in 'n rol-tot-rol-proses te gebruik. Multilaagstrukture word vervaardig deur die verskilende lagies sekvensieel te groei.

'n Skematiese voorstelling van die reaktor word in figuur 1 getoon. Die sisteem bestaan basies uit 'n substraattafel waarvan die afmetings 320 mm x 300 mm is. Die hele reaktor is elektries gegrond en geïsoleer van die RF-antenne. Die afstand tussen die antenne en die substraattafel kan tussen 0 en 80 mm deur middel van vier stelskroewe verstel word. Die RF-sein word via 'n pasnetwerk na die antenne gevoer deur middel van 'n vakuumdeurvoer. Die gasdeurvoer is so ontwerp dat die rigting en posisie van die gasinlaat verander kan word. Die reaktor is verder vervaardig om 'n basisvakuum van laer as 10^{-6} Torr (1.33×10^{-6} Pa) te kan onderhou, terwyl die groeiproses by 750 mTorr (100 Pa) plaasvind. Glassubstrate van 320 mm x 300 mm is gebruik.

Diktebepalings is by verskillende posisies op die lagies uitgevoer deur van optiese transmissiespektra-metings⁶ gebruik te maak.

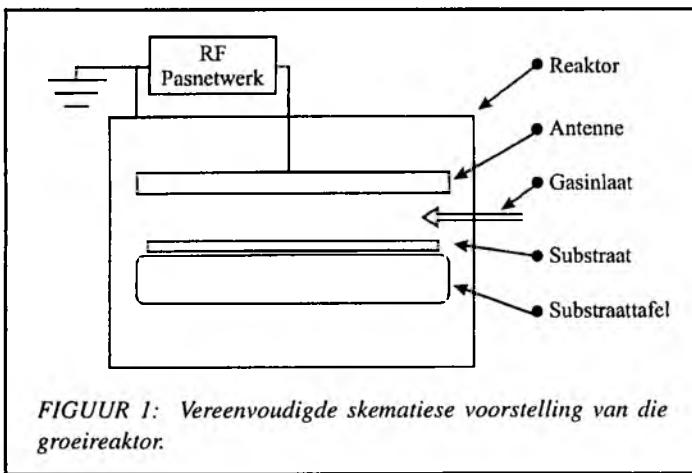
RESULTATE

Die homogeniteit van die lagies is geoptimeer deur die vorm van die antenne, die afstand tussen die antenne en die substraat, die rigting en posisionering van die gasinlaat en die waterstofverdunning te optimeer. Ten einde die resultate kompak weer te gee, word van die skematische voorstelling in figuur 2 gebruik gemaak.

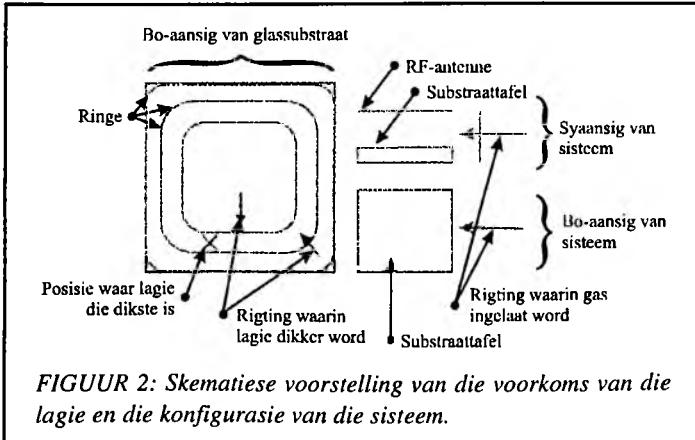
Hierdie figuur bestaan uit drie dele, naamlik die bo-aansig van die glassubstraat waarop die lagie gegroeи is, en die bo- en syaansigte van die sisteem waar die rigting aangedui word waarin die gas in die sisteem ingelaat word. As gevolg van inhomogeniteite is die dikte van die lagie nie orals dieselfde nie en gevoglik word interferensiepatrone waargeneem wanneer lig vanaf die lagie weerkaats word. Indien die lagie nou van skuins af onder monochromatiese lig beskou word, kan hierdie interferensiepatrone duidelik waargeneem word. Hierdie patroon word dan skematis voorgestel deur die lyne op die substraat soos in figuur 2. Die lyne kan dus as kontoerlyne beskou word wat die dikte van die lagie aandui.

Daar is ses verskillende konfigurasies van die sisteem ondersoek, asook die uitwerking wat elke konfigurasie op die homogeniteit van die resultante lagies het. Hierdie ses konfigurasies, tesame met die voorkoms van die lagies word skematis in figuur 3 aangedui, in terme van die skema van figuur 2.

(a) Die eenvoudigste opstelling is waar die gasinlaat by die deur van die reaktor reguit na binne gerig is, sodat die reaksiegas reguit in die sisteem inblaas. As antenne is 'n metaalrooster gebruik waarvan die reghoekige openinge 40 mm x 15 mm groot is. Hierdie antenne lei egter tot inhomogene lagies, en roostervormige lyne word ook in die lagie waargeneem. Om hierdie probleem op te los, is 'n tweede rooster met dieselfde afmetings gebruik, maar dit is vervaardig van geweefde vlekvrye staal. Die gebruik van hierdie fyner rooster skakel die probleem van die roostervormige



FIGUUR 1: Vereenvoudigde skematische voorstelling van die groeireaktor.



FIGUUR 2: Skematische voorstelling van die voorkoms van die lagie en die konfigurasie van die sisteem.

lyne in die lagie uit, en 'n gebied – ongeveer die helfte van die oppervlakte van die substraat – word verkry, waarvan die homogeniteit aanvaarbaar is. Uit die assimetrie van die lyne in die horisontale rigting kan dit egter afgelei word dat die rigting van die gasinlaat, waardeur die gas in 'n horisontale rigting oor die substraat blaas, aanleiding gee tot inhomogeniteit.

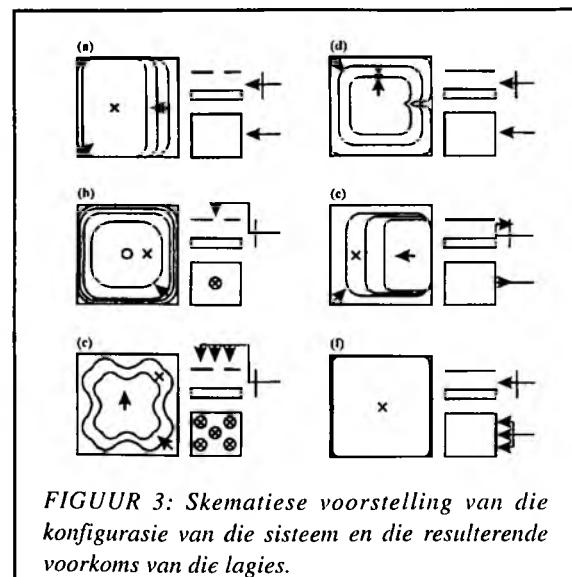
(b) 'n Verandering is dus aangebring om die gas bokant die antenne in die sisteem in te laat, sodat dit van bo-af deur die antenne tot by die substraat vloei. Die resultaat toon lyne in hierdie laag wat konsentries rondom die middel uitkring, en die gradiënt in die dikte neem toe na die kant van die substraat. In die middel van die substraat, reg onder die gasinlaat, word 'n klein kol gevorm waarin die lagie dun is. Dit is duidelik dat hierdie kol en die lyne hul oorsprong het in die rigting van die gasinlaat. Die afstand tussen die antenne en die substraat is ook verstell, maar die resultaat het kwalitatief dieselfde gebly. Indien die antenne nader aan die substraat geplaas word, word meer lyne egter waargeneem, aangesien die resultante lagies ietwat dikker word vir dieselfde groeityd.

(c) Die konfigurasie is aangepas deur die inlaat te verander sodat die gas vanaf 'n reëlmateriale verspreiding van punte van bo in die rigting van die substraat blaas. Die resultante lagies toon egter steeds 'n dun gebied in die middel, en die geometrie van die gasinlaat word ook steeds weerspieël in die patrone in die lagie. Daar is egter wel vasgestel dat die optimumafstand tussen die antenne en die grondplaat 30 mm is, aangesien die aantal waargeneome lyne sodoende 'n minimum is. Vir afstande anders as 30 mm was dit duidelik dat die lagies meer inhomogeen is, aangesien 'n groot aantal bykomende lyne in die lagie waargeneem word, terwyl die dikte van die lagies konstant gebly het.

Hierdie resultate dui daarop dat die gebruik van 'n roostervormige antenne nie suksesvol gebruik kan word om homogene lae te groei nie. In teenstelling hiermee gebruik Sansonnens et al.⁵ egter 'n sisteem waarin die gas van bo-af deur 'n spoeier ingelaat word, en hulle meld dat homogene lae sodoende verkry word. Die homogeniteit H word gedefiniëer as

$$H = \frac{d_{\max} - d_{\min}}{d_{\max} + d_{\min}},$$

waar d die dikte van die lagie is. Met hierdie opstelling dokumenteer Sansonnens et al.⁵ waardes vir H van 5%. Hierdie metode behels dat glasstroke langs die substraat op die substraattafel geplaas moet word om die diskontinuïteite in



FIGUUR 3: Skematische voorstelling van die konfigurasie van die sisteem en die resulterende voorkoms van die lagies.

die elektriese veld na die glasstroke te verplaas. Die nadeel van hierdie metode is egter dat die volle oppervlak van die substraattafel nie benut kan word nie. Hierdie onderbenutting van die substraattafel lei dan tot 'n laer produksievermoë, wat ongewens is in 'n werklike produksieproses.

'n Tweede opsie, naamlik die gebruik van 'n antenne in die vorm van 'n soliede plaat is dus vervolgens ondersoek.

(d) In hierdie opstelling bestaan die antenne uit 'n soliede aluminiumplaat met 'n dikte van 5 mm. Die enkele gasinlaat is in die middel van die substraat, tussen die antenne en die substraattafel. Die resultaat toon dat al die lagies baie inhomogeen is. Die deel van die lagie by die middel van die glassubstraat was te dun om te meet, en in sommige gevalle het geen neerslag in die middel plaasgevind nie. Rondom hierdie dun laag in die middel het neerslag wel plaasgevind, en die materiaaldikte vertoon simmetries rondom die substraat. Aan die kante van die substraat is die lagie ook dun. Die resultate toon ook duidelik dat die gasvloeipatroon die homogeniteit beïnvloed, aangesien die lyne 'n buiging toon wat ooreenkoms met die posisie waar die reaksiegas die sisteem binnekomen het.

Daar is verder gevind dat die afstand tussen die antenne en die substraat 'n wesenlike invloed op die homogeniteit van die lae uitoefen, meer as met die rooster-antenne. Indien die afstand tussen die antenne en die substraat groot is, word die oppervlak van die dun gebied in die middel kleiner, maar heelwat meer ringe word na die kant van die substraat toe waargeneem. Vir kleiner afstande vergroot die oppervlak van die dun gebied in die middel, en 'n groot aantal diggespasieerde ringe word aan die kant van die substraat waargeneem.

(e) In 'n poging om die effek van die gasinlaat te verwijder, is die inlaat vervolgens verander sodat die gas weg van die substraat af inspuit. Die resultante lagie toon egter steeds die invloed van die gasvloeirichting, aangesien die deel van die lagie naaste aan die gasinlaat baie dun is. Dit blyk dus dat die gas wel in die rigting van die substraat ingelaat moet word.

(f) Die konfigurasie is vervolgens verander sodat die gasinlaat uit drie gassuite bestaan wat na die substraat gerig is, sodat die gas-invloeipatroon nie in een lyn gekonsentreer is nie. Met hierdie konfigurasie is gevind dat die optimumafstand tussen die antenne en die substraat 20 mm is en dat daar sodoende

homogene lae verkry word. Indien die antenne nader of verder van die substraattafel af is, is die lagic meer inhomogeen en volg kwalitatief die verloop van die resultaat in deel (d) van figuur 3.

'n Verdere waarneming wat gemaak is, is dat die verdunning van die silaangas met waterstof die homogeniteit ook verbeter. By al die resultate wat hier bo bespreek is, is waargeneem dat verdunning van die silaangas met waterstof lei tot meer homogene lae as daarsonder, selfs al word geen verdere veranderinge aan die konfigurasie van die sisteem aangebring nie. Dit is bekend dat die silaangas tydens die groeiproses met waterstof verdun moet word, omdat dit aanleiding gee tot beter kwaliteit materiaal. Daar word egter geen melding in die literatuur gemaak van die invloed van waterstof op die homogeniteit nie.

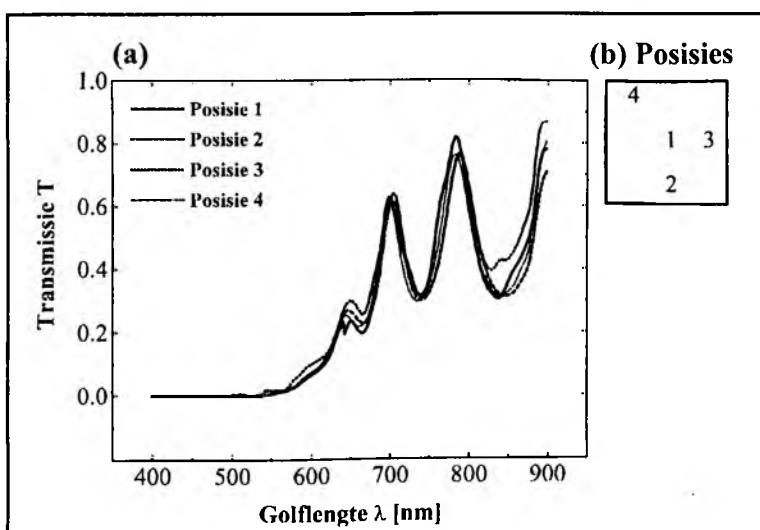
Met die konfigurasie van die sisteem soos onder punt (f) hier bo bespreek, word lagies gelewer wat oor meer as 90% van die substraatoppervlak homogeen is daarin dat geen interferensierringe waargeneem kon word nie, behalwe heel aan die kant van die substraat soos aangedui in figuur 3 (f). Die voor-koms van hierdie lyne is egter nie 'n probleem nie, aangesien die uiteindelike proses behels dat 'n polimeersubstraat stadig oor die substraattafel beweeg (in die horizontale rigting in die figuur), sodat die inhomogeniteite in die horizontale rigting sodoende uitgeskakel word.

Die optiese transmissiespektra, wat by 'n aantal punte op die homogene lagies gemeet is, word in figuur 4 getoon en die gemete diktes word in figuur 5 getoon.

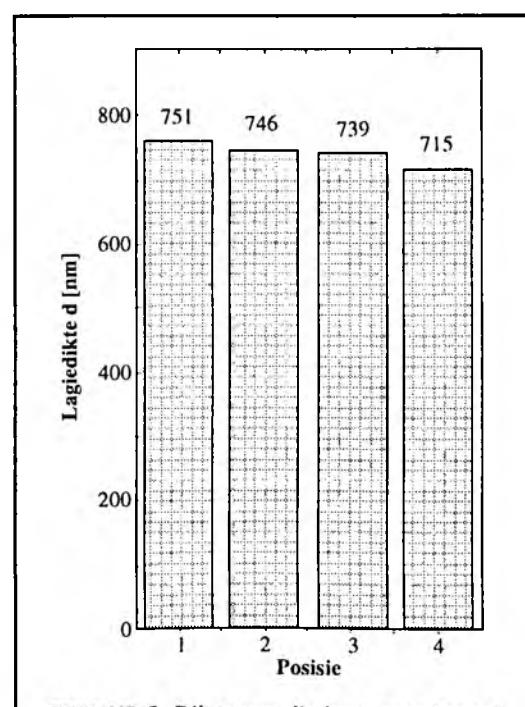
Uit hierdie figure is dit duidelik dat die variasie in die gemete diktes klein is. Die optiese transmissiespektra, wat baie sensitief vir die dikte is, volg 'n amper identiese verloop. Die homogeniteitsmetings verskaf 'n waarde vir H van slegs 2,5%, wat laer is as enige ander waardes wat in die literatuur vermeld word.

GEVOLGTREKKING

Die verklaring van hierdie resultate kan gedoen word aan die hand van die elektriese veld in die plasma tydens die groeiproses. Dit is algemeen bekend dat die elektriese veld afhanklik is van



FIGUUR 4: (a) Optiese transmissiespektra soos gemeet by die vier posisies op die 320 mm x 300 mm glassubstraat soos aangedui in (b).



FIGUUR 5: Diktes van die lagie soos bepaal by die verskillende posisies op die substraat.

die geometrie van die parallelplaat-opstelling, wat in die reaktor gebruik word. Die veld word dus deur die afstand tussen die antenne en die substraat bepaal, asook deur die vorm van die antenne. Indien hierdie twee parameters verander word, vind 'n dienooreenkomslike verandering in die elektriese veldprofiel plaas, en die voorkoms van die resulterende lages word dienooreenkomsdig beïnvloed. Vir die geoptimeerde konfigurasie van die sisteem is die elektriese veldprofiel dus sodanig dat die lages homogeen is vanweë 'n geleidelike verandering van die elektriese veld oor die oppervlak van die substraat.

Die invloed wat die plasing en rigting van die gasinlaat op die voorkoms van die lages het, is op die groeikinetika gebaseer. Die reaksiegasse word deur die plasma gedissosieer en geioniseer,⁷ en die voorloperspesies (hoofsaaklik SiH_x) adsorbeer aan die oppervlak van die substraat. Die silikonnetwerk word dan uitgebrei deur kruiskoppeling wat plaasvind tussen die reeds geadsorbeerde spesies en die nuwe voorlopers wat voortdurend by die groeiende oppervlak aankom. Indien die gasvloeipatroon dan 'n inhomogene verspreiding van voorloperspesies veroorsaak, is dit te verwagte dat hierdie gasvloeipatroon in die gegroeide materiaal weerspieël sal word. Die gebruik van 'n verdeling van gasinlaatpunte, soos wat in die geoptimeerde konfigurasie gebruik word, lei dan tot 'n homogene verspreiding van voorloperspesies en dus 'n homogene laag.

Die verklaring van die invloed wat die byvoeging van waterstof tot die homogeniteit het, is tweeledig. Daar is eerstens waargeneem dat die RF-passing effens verander wanneer onverdunde silaan alleen gebruik is. Hieruit kan aangeleid word dat die aard van die plasma verander as funksie van die gassmengsel wat tydens die groeiproses gebruik word. Die elektriese veld verander dus wanneer waterstof ook in die plasma teenwoordig is, en hierdie veranderde veld gee dan aanleiding tot meer homogene materiaal. 'n Tweede meganisme wat hier ter sake is, is die mengaksie wat die waterstof tot gevolg het. Die waterstof tree naamlik op as 'n "stoot-gas" wat effektiel die silaangas meng wanneer dit in die reaktorkamer inbeweeg. Gevolglik kan die groeiproses by 'n hoër druk plaasvind sonder dat poeivorming plaasvind.⁸ Die parsiële druk van die silaan bly egter konstant, sodat die aktiewe voorloperspesies meer uniform oor die substraatoppervlak voorkom. Hierdie uniforme verspreiding gee dan aanleiding tot 'n groter mate van homogeniteit.

'n Verdere voordeel van die geoptimeerde reaktorgeometrie, afgesien van die goeie homogeniteit, is dat die volle substraattafel deur 'n groot substraat gebruik kan word, anders as die geval met ander reaktore. Wanneer berekenings gedaan word betreffende die vervaardigingskoste van die materiaal met hierdie sisteem, speel hierdie groot beskikbare oppervlak 'n beduidende rol in die verlaging van die koste van die uiteindelike selle.

SUMMARY

Despite a number of problems associated with α -Si:H, it is still regarded as a "champion material" for photovoltaic applications.¹ The advantages of using α -Si:H in solar cells include:⁴ low production cost, short energy pay-back time, high optical absorption and adaptability for innovative designs.

In the production of α -Si:H-based devices a primary requirement is the homogeneity of the grown material. Sansonnens et al.⁵ used glass strips alongside the actual substrate to displace the discontinuities in the electric field away from the sides of the substrate towards the strips. This configuration resulted in homogeneous layers. Few studies have been performed on the

optimisation of large-scale reactors with regard to homogeneity.

A pilot plant was developed for the glow-discharge production of α -Si:H thin films to manufacture solar cells. The reactor is schematically represented in figure 1. It basically consists of a 320 mm x 300 mm substrate table, an RF-antenna and a gas inlet of which the position and direction can be adjusted. The distance between the substrate and antenna is also adjustable. Glass substrates of size 320 mm x 300 mm were used.

The results are demonstrated by means of the schematic indicated in figure 2. This schematic consists of three parts, which are the top view of the substrate, as well as the top and side views of the position and direction of the gas inlets. The lines on the substrate can be considered as contour lines indicating the thickness and homogeneity of the layers. The position of highest thickness is indicated by an X, and the arrows indicate the direction in which the layers become thicker. The results regarding the influence of the configuration of the system on the homogeneity of the films are thus summarised in figure 3.

For the configurations corresponding to parts (a) to (c) of figure 3, where the antenna consisted of stainless steel cloth, the resulting layers were inhomogeneous regardless of the different directions of the gas inlet. Sansonnens et al.⁵ used a similar configuration, but reported homogeneous layers. With the homogeneity factor defined as

$$H = \frac{d_{\max} - d_{\min}}{d_{\max} + d_{\min}}$$

Sansonnen et al. reported values of $H=5\%$. However, this method of inserting glass strips next to the substrate implies that the whole of the substrate table is not utilised, resulting in a lower production capacity.

The antenna was replaced by a solid aluminium plate, and the gas inlet was adapted to consist of 3 inlets directed toward the substrate, as indicated in part (f) of figure 3. With this configuration, and with the distance between the antenna and the substrate optimised at 20 mm, homogeneous layers were produced with a value of $H=2.5\%$. This value for H is lower than any other quoted in the literature. The remaining inhomogeneities will be eliminated by the roll-to-roll process ultimately to be employed. It was also found that dilution of the reactive gasses with hydrogen resulted in more homogeneous layers for all configurations. The optical transmission spectra, measured at different positions on the homogeneous films, are indicated in figure 4 and the corresponding thicknesses are indicated in figure 5.

Explanations for these phenomena can be offered in terms of the electric field and growth kinetics. The distance between the antenna and the substrate mainly determine the electric field profile and hence the corresponding appearance of the films. The gas inlet determines the concentration of precursor species and hence the homogeneity of the films. The hydrogen dilution serves to effectively mix the reactive gasses and prevents the formation of particles in the plasma.⁸ For the optimised configuration both the electric field profile and precursor density distribution are regular, resulting in homogeneous films. Since the whole of the substrate table is utilised, this configuration also results in an optimal production capacity.

LITERATUURWERWYSINGS

1. Hamakawa, Y. (1994). Recent advances of thin film solar cells and their technologies, *First World Conference on Photovoltaic Energy Conversion*, Hawaii, 34-41.
2. Staebler, D.L., Wronski, C.R. (1977). Reversible conductivity changes in discharge-produced amorphous Si, *Appl. Phys. Lett.*, 31 (4), 292-294.

3. Hack, M., Shur, M. (1985). Analysis of light-induced degradation in amorphous silicon alloy p-i-n solar cells, *J. Appl. Phys.*, 58 (4), 1656-1661.
4. Saunderson, J.D., Scholtz, E., Swanepoel, R. (1995). Amorphous silicon solar cells on flexible substrates, *PVCON '95 – a Conference on Photovoltaic Technology*, Berg-en-Dal, Kruger National Park.
5. Sansonnens, L., Franz, D., Hollenstein, Ch., Howling, A.A., Schmitt, J., Turlot, E., Emeraud, T., Kroll, U., Meier, J., Shah, A. (1995). Diagnostics of an industrial plasma reactor for large area amorphous silicon cells, *13th European Photovoltaic Solar Energy Conference*, Nice, France, 276-279.
6. Swanepoel, R. (1983). Determination of the thickness and optical constants of amorphous silicon, *J. Phys. E: Sci. Instrum.*, 16, 1214-1222.
7. Das, D. (1995). Plasma kinetics, surface phenomena and growth mechanism in hydrogenated amorphous silicon: Transition from amorphous to micro- and nano-crystalline Si:H, *Sol. St. Phenom.*, 44-46, 227-258.
8. Saunderson, J.D. (1997). Tegnologie-ontwikkeling vir 'n buigbare amorse silikon-sonsel-vervaardigingsproses, Ph.D.-proefskrif, Departement Fisika, Randse Afrikaanse Universiteit.