

بهبود خواص الکتریکی و اپتیکی لایه نازک ITO با اصلاح فاصله الکترودها در سامانه اسپاترینگ DC مگنترونی

عبدالنبی کوثریان^۱، دانشیار؛ علیرضا کرامت زاده^۲، دانشجوی دکتری؛ مریم شکیبا^۳، دانشجوی دکتری؛ هومان کعبی^۴، استادیار؛ ابراهیم فرشیدی^۵، استاد

۱- دانشکده مهندسی - دانشگاه شهید چمران اهواز - اهواز - ایران - a.kosarian@scu.ac.ir

۲- دانشکده مهندسی - دانشگاه شهید چمران اهواز - اهواز - ایران - a-keramatzadeh@phdstu.scu.ac.ir

۳- دانشکده مهندسی - دانشگاه شهید چمران اهواز - اهواز - ایران - m-shakiba@phdstu.scu.ac.ir

۴- دانشکده مهندسی - دانشگاه شهید چمران اهواز - اهواز - ایران - h.kaabi@scu.ac.ir

۵- دانشکده مهندسی - دانشگاه شهید چمران اهواز - اهواز - ایران - farshidi@scu.ac.ir

چکیده- یکی از پارامترهای مهم در لایه‌نشانی لایه‌های نازک اکسید ایندیوم-قلع (ITO) به روش کندوپاش مگنترونی، فاصله الکترودها است که با تغییر آن شرایط پلاسمای رسوب تغییر می‌کند. در این تحقیق لایه‌های نازک ITO به روش کندوپاش مگنترونی DC، با تغییر فاصله الکترودها در گستره ۵-۱۱ cm، بر بستر شیشه در دمای اتاق رسوب داده شده‌است. تحت شرایط فوق ضخامت نمونه‌ها در محدوده ۱۱۰-۳۷۰ nm، متوسط اندازه دانه‌های کریستالی برای نمونه لایه‌نشانی شده در فاصله مطلوب ۷ cm برابر با 50 ± 5 nm و جذر میانگین مربعات زبری سطح برابر با ۱/۹۷ nm به دست آمده‌است. همچنین مشاهده شد که لایه نازک ITO دارای ساختار مکعبی بیکیسایت می‌باشد. مقاومت ورقه‌ای لایه‌های نازک ITO در فواصل ۵، ۷، ۹ و ۱۱ cm به ترتیب برابر با ۱۷/۷، ۱۶، ۱۷۳۳ و $5207 \Omega/\square$ اندازه‌گیری شده‌اند. شفافیت لایه‌های نازک رسوب داده شده در بازه ۴۰۰-۸۰۰ nm در محدوده ۷۵-۸۵٪ متغیر است. براساس نتایج برای فاصله الکترودهای ۷ cm، مقاومت ورقه‌ای ITO تا $16 \Omega/\square$ کاهش می‌یابد و درعین حال برای ضخامت ۲۳۰ nm، شفافیت آن ۸۵٪ است که برای استفاده به عنوان کنتاکت در سلول خورشیدی سیلیکن آمورف بسیار مناسب است. علاوه بر نتایج عملی، آنالیز داده‌ها به کمک نرم‌افزارهای MATLAB و X'Pert و شبیه‌سازی پلازما نرم‌افزار شبیه‌ساز پلازما xpdp1 انجام شده‌است.

واژه‌های کلیدی: لایه‌های نازک ITO، سیستم کندوپاش مگنترونی DC، فاصله الکترودها، مقاومت ورقه‌ای، شفافیت لایه نازک، ویژگی‌های ساختاری.

Improvement of electrical and optical properties of thin ITO films by modifying electrode spacing in DC magnetron sputtering

Abdolnabi Kosarian¹, Associate professor; Alireza Keramatzadeh², PhD Student; Maryam Shakiba³, PhD Student; Hooman Kaabi⁴, Assistant professor; Ebrahim Farshidi⁵, Professor

1- Faculty of Engineering, Shahid Chamran University of Ahvaz, Ahvaz, Iran, Email: a.kosarian@scu.ac.ir

2- Faculty of Engineering, Shahid Chamran University of Ahvaz, Ahvaz, Iran, Email: a-keramatzadeh@phdstu.scu.ac.ir

3- Faculty of Engineering, Shahid Chamran University of Ahvaz, Ahvaz, Iran, Email: m-shakiba@phdstu.scu.ac.ir

4- Faculty of Engineering, Shahid Chamran University of Ahvaz, Ahvaz, Iran, Email: h.kaabi@scu.ac.ir

5- Faculty of Engineering, Shahid Chamran University of Ahvaz, Ahvaz, Iran, Email: farshidi@scu.ac.ir

Abstract: An important parameter in the deposition of thin-film Indium-Tin-Oxide layers by magnetron sputtering is the spacing between the anode and cathode electrodes, by which the conditions of plasma deposition and the properties of the resulting films are controlled. In this paper, thin ITO films are deposited on glass substrates using the DC-magnetron sputtering technique at RT for different electrode spacing. The thickness of the layers has been measured in the range 110-370 nm. The XRD studies confirm that crystalline structure of ITO is cubic bixbyite. The sheet resistance of the samples prepared at the electrode spacing of 5, 7, 9, and 11 cm, are 17.7, 16, 1723, and 5207 Ω/\square , respectively. The transmittance of the films in the spectral range of 400-800 nm is 75-85%. The lowest sheet resistance of 16 Ω/\square is obtained at the spacing of 7 cm, having a transparency of 85% and a thickness of 230nm, which confirms that it is appropriate for use as the transparent contact in amorphous silicon solar cells. For such samples the average grain size of the crystallites and the root-mean-square of the roughness of the surface are 50 ± 5 nm and ≈ 1.97 nm, respectively. The process simulations are also achieved using xpdp1, X'Pert and MATLAB software.

Keywords: ITO thin films, DC magnetron sputtering, electrode spacing, sheet resistance, transmittance, electrical and optical properties.

تاریخ ارسال مقاله: ۱۳۹۶/۱۱/۱۴

تاریخ اصلاح مقاله: ۱۳۹۷/۰۵/۲۷ و ۱۳۹۷/۰۸/۲۴

تاریخ پذیرش مقاله: ۱۳۹۷/۱۱/۰۷

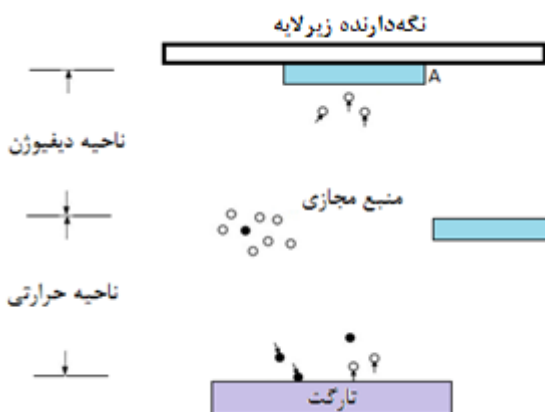
نام نویسنده مسئول: عبدالنبی کوثریان

نشانی نویسنده مسئول: ایران - اهواز - ابتدای بلوار گلستان - دانشگاه شهید چمران اهواز - دانشکده مهندسی.

۱- مقدمه

شده است. این مدل، اثر فاصله ماده هدف-زیرلایه را بر نرخ رسوب نشان می‌دهد. انرژی جنبشی ذرات اسپاتر شده در ناحیه حرارتی، بزرگ است و نرخ رسوب زمانی که زیرلایه در این ناحیه قرار دارد، نسبتاً زیاد است (به عنوان مثال موقعیت زیرلایه B). این درحالی است که با افزایش فاصله ماده هدف-زیرلایه، در صورتی که زیرلایه در ناحیه دیفیوژن باشد، نرخ رسوب کاهش خواهد یافت زیرا انتقال ذرات اسپاتر شده از منبع مجازی به زیرلایه از طریق دیفیوژن انجام شده و مربوط به گرادیان غلظت ذرات است [۱۷]. علاوه بر این کاهش نرخ رسوب با افزایش فاصله ماده هدف و زیرلایه تابعی از زاویه خروج ذرات از ماده هدف است. در واقع، در صورتی که توزیع زاویه گسیل از ماده هدف رفتاری کسینوسی داشته باشد، با حرکت زیرلایه به فواصل دورتر، احتمال برخورد برخی از ذرات به دیواره محفظه، قبل از رسیدن به زیرلایه، افزایش یافته که این اثر منجر به کاهش نرخ رسوب خواهد شد [۲۹].

در این میان فشار کلی محفظه، P_{tot} ، و توان کندوپاش با جابه‌جایی موقعیت منبع مجازی، نرخ رسوب و خصوصیات لایه نازک ITO را به شدت تحت تأثیر قرار خواهند داد. در واقع، با افزایش توان RF و کاهش فشار کندوپاش، منبع مجازی به موقعیت‌هایی دورتر از ماده هدف منتقل می‌شود. بنابراین افزایش توان RF منجر به افزایش چگالی و متوسط انرژی اولیه^۴ خواهد شد، که این امر افزایش احتمال مکانیزم‌های برخوردی و در نتیجه h بزرگ‌تر را به دنبال خواهد داشت [۱۸]. همچنین جابه‌جایی موقعیت منبع مجازی، به دلیل تغییر فشار کلی محفظه نیز مرتبط با تغییر مسیر آزاد میانگین ذرات است [۱۹].



شکل ۱: موقعیت نسبی ماده هدف، زیرلایه و منبع مجازی. در این ساختار، A و B موقعیت‌های مختلف زیرلایه را نشان می‌دهند [۱۸]

۲- مواد و روش آزمایش

در این تحقیق لایه‌های نازک ITO به روش کندوپاش مگنترونی DC، به کمک ماده هدف ITO (با خلوص ۹۹/۹۹٪، قطر ۵ cm، ضخامت ۳ mm) و با درصد وزنی $\text{In}_2\text{O}_3 : \text{SnO}_2 = 90 : 10 \text{ wt.}\%$ ، در دمای اتاق لایه‌نشانی شده‌اند. فشار پایه سیستم قبل از آغاز لایه‌نشانی تا $2 \times 10^{-5} \text{ torr}$ پایین آورده شده و سپس گاز آرگون خالص تا رسیدن به فشار کاری مورد نظر به محفظه وارد می‌شود. زیرلایه‌های شیشه، در حمام آلتراسونیک به مدت ۱۵ دقیقه در آب دی‌یونیزه و متانول

لایه‌های نازک ITO به عنوان یک اکسید هادی شفاف، در بسیاری از ادوات اپتیکی به ویژه صفحه نمایش کریستال مایع، آشکارسازهای نوری و الکترودهای ضد بازتاب در سلول‌های خورشیدی مورد استفاده قرار می‌گیرند. در کاربردهای مذکور بهبود خواص اپتوالکتریکی فیلم‌های نازک ITO، از اهمیت به‌سزایی برخوردار است. در این میان تولید لایه-های ITO با کیفیت بالا از دو منظر نوع فناوری ساخت و کنترل فرآیند ساخت، قابل بررسی است. امروزه لایه‌های نازک ITO، با استفاده از تکنیک‌های مختلفی از جمله تجزیه حرارتی توسط افشانه، لایه نشانی لیزر پالسی، روش سل ژل و کندوپاش مگنترونی تولید می‌شوند [۵-۱]. روش کندوپاش مگنترونی با داشتن نرخ رسوب بالا در فشار کاری کم و نیز امکان کنترل پارامترهای لایه‌نشانی از جمله دمای زیرلایه [۷،۶]، فشار محفظه [۸،۶]، نوع ترکیب گازی [۹-۱۲]، توان کندوپاش [۱۴،۱۳،۶]، آمایش حرارتی [۱۵] و فاصله الکترودها [۱۶-۲۱]، امکان رسوب لایه‌های نازک با کیفیت مطلوب را داراست و به طور گسترده‌ای در صنعت ITO مورد استفاده است. در پژوهش‌هایی که اخیراً انجام گرفته تأثیر برخی پارامترها بر عمل‌کرد و ویژگی‌های اپتوالکتریکی فیلم ITO بررسی شده‌اند [۲۳،۲۲]. در پژوهش حاضر تأثیر فاصله الکترودها، به عنوان یکی از مهم‌ترین پارامترها، در سیستم اسپاترینگ DC بر خصوصیات اپتوالکتریکی فیلم ITO مورد بررسی قرار گرفته است. بررسی اثر توان و فشار کندوپاش به منظور دستیابی به مقادیر مطلوب این دو پارامتر در رسوب لایه‌های نازک ITO با کیفیت بالا در مرجع [۲۲] انجام شده است.

در سیستم کندوپاش، اتم‌ها یا مولکول‌های کنده شده از ماده هدف، تحت مکانیزم‌های برخوردی با اتم‌های گازی، بخشی از انرژی خود را در مسیر رسیدن به زیرلایه از دست خواهند داد. انرژی اتم‌ها یا مولکول‌های اسپاتر شده، پس از انجام برخوردهای متوالی، در فاصله h از ماده هدف تا مقدار انرژی حرارتی^۱ گاز (kT) کاهش خواهد یافت. تعداد برخوردهای لازم n برای رسیدن اتم‌ها یا مولکول‌های اسپاتر شده به این سطح از انرژی حرارتی، باتوجه به انرژی اولیه این ذرات، با فاصله حرارتی^۲، h ، آن‌ها مرتبط خواهد بود:

$$h = n\lambda \quad (۱)$$

که در آن λ مسیر آزاد میانگین است و براساس رابطه تجربی $\lambda_p = 6/3 \times 10^{-3} \text{ mbar.cm}$ به دست می‌آید (در این رابطه p فشار محفظه است) [۱۶]. بنابراین فاصله حرارتی h وابسته به فشار و توان کندوپاش است. در دیگر تحقیق انجام شده، ایده فرض وجود یک منبع مجازی از اتم‌های اسپاتر شده در فاصله h از ماده هدف، ارائه شده است. در این ایده، منبع مجازی، مطابق شکل ۱، فضای میان ماده هدف و زیرلایه را به دو ناحیه تقسیم می‌کند: ناحیه حرارتی^۳ (در حدفاصل ماده هدف و منبع مجازی) و ناحیه دیفیوژن (از منبع مجازی تا زیرلایه). در تحقیق مذکور، موقعیت این منبع مجازی، در توان RF ۵۰ W و در فشار ۱۰ mTorr آرگون، در فاصله تقریبی ۵۰ mm از ماده هدف محاسبه

میزان عبوردهی نوری و جذب به کمک طیف‌سنج فرابنفش-مرئی مدل Specord s600 در محدوده ۴۰۰-۸۰۰ نانومتر اندازه‌گیری شده‌است.

۳- تجزیه و تحلیل یافته‌ها

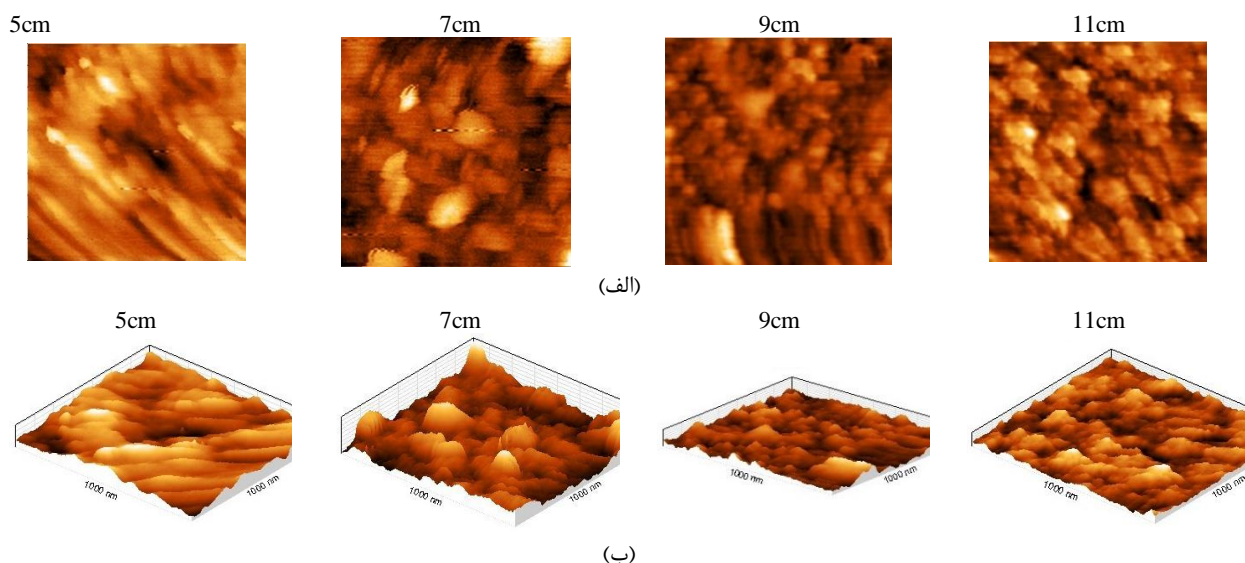
نتایج حاصل از آنالیز AFM، فرض افزایش خواص کریستالی لایه نازک، با کاهش فاصله الکترودها را تقویت می‌کند. در شکل ۲، تصویر گرفته‌شده در ابعاد $1000 \times 1000 \text{ nm}$ ، از سطح نمونه‌های لایه‌نشانی شده با تغییر فاصله الکترودها در محدوده ۵-۱۱ cm را به وضوح نشان می‌دهد. به کمک این سیستم متوسط اندازه دانه‌های کریستالی برای نمونه لایه‌نشانی‌شده در فواصل ۵، ۷، ۹ و ۱۱ cm الکترودها، به ترتیب برابر با $65 \pm 5 \text{ nm}$ ، $50 \pm 5 \text{ nm}$ ، $45 \pm 5 \text{ nm}$ و $40 \pm 5 \text{ nm}$ و جذر میانگین مربع میزان زبری سطح به ترتیب برابر با ۲/۶۹، ۱/۹۷، ۱/۹۳ و ۱/۴۷ nm اندازه‌گیری شده‌است.

همچنین ضخامت اندازه‌گیری‌شده با استفاده از این سیستم، برای نمونه‌های لایه‌نشانی‌شده در فواصل ۵، ۷، ۹ و ۱۱ cm الکترودها، به ترتیب برابر با ۳۷۰، ۲۳۰، ۲۰۰ و ۱۱۰ nm است. این اثر کاهش نرخ رسوب، با افزایش فاصله الکترودها را نشان می‌دهد.

باتوجه به شکل ۲(ب)، مشاهده می‌شود که در فواصل کمتر ۵ و ۷ cm توزیع یک‌نواختی از دانه‌های بزرگ‌تر وجود دارد درحالی‌که در فواصل بیش‌تر دانه‌های کوچک‌تر با توزیعی تصادفی در سطح لایه نازک ITO دیده می‌شوند. طبق نتایج حاصل از بررسی و مطالعه اثر فاصله الکترودها بر انرژی جنبشی یون‌ها و الکترون‌ها با استفاده از نرم‌افزار شبیه‌سازی پلاسمای xpdp1 (شکل ۴)، در فواصل بیش‌تر الکترودها، انرژی جنبشی ذرات کاهش خواهد یافت و ذرات اسپاتر شده ماده هدف که با انرژی کمتر به سطح زیرلایه می‌رسند، دانه‌های کریستالی کوچک‌تر با توزیعی تصادفی را شکل خواهند داد.

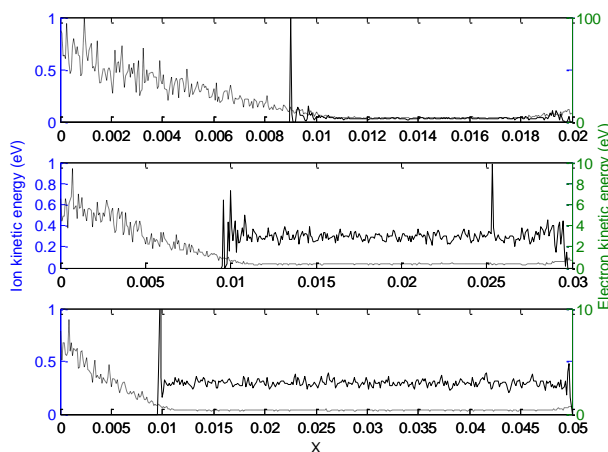
تمیزکاری شده و پس از خشک‌شدن به کمک گاز نیتروژن در محفظه قرار داده می‌شوند. برای نمونه‌های مختلف، توان کندوپاش در مقدار مطلوب ۱۰۰ W ثابت نگه‌داشته شده [۲۲] و فاصله الکترودها در سیستم کندوپاش برای لایه‌نشانی از ۵ cm تا ۱۱ cm متغیر در نظر گرفته شده‌است. همچنین به منظور کاهش اثر مخرب فشار بر خصوصیات ساختاری و اپتوالکتریکی فیلم ITO، لایه نشانی هر نمونه در حداقل فشار لازم برای خودنگهداری پلاسمای انجام شده‌است. براساس نتایج تجربی به دست آمده در آزمایشگاه محل تحقیق، برای فاصله الکترودهای ۷ cm، حداقل فشار کاری برای خودنگهداری پلاسمای برابر ۱۶، ۲۴، ۳۲، ۷۴ و ۹۶ میلی تور به ترتیب به ازای توان DC پلاسمای ۲۰، ۶۰، ۱۰۰، ۱۴۰ و ۱۸۰ وات می‌باشد. تفصیل این شرایط در مقاله دیگری از نویسندگان حاضر ارائه شده‌است [۲۲]. در اینجا از نمونه ITO رسوب‌یافته در توان 100W استفاده شده‌است که برای استفاده در سلول خورشیدی سیلیکن آمورف مناسب است. این نمونه علاوه بر مقاومت ورقه‌ای بسیار اندک ($16 \Omega/\square$)، دارای درصد عبور نوری ۸۵٪ است و درعین حال ضخامت نسبتاً کمی دارد. این ویژگی‌ها لایه ITO را برای اتصال بالایی سلول خورشیدی مناسب می‌سازند. زمان لایه‌نشانی برای همه نمونه‌ها برابر ۱۰ دقیقه است.

الگوهای پراش پرتو X با استفاده از پراش‌سنج Philips Analytical X-Ray BV مدل PW ۱۸۴۰ ثبت شده‌اند (۰۶-۰۴۱۶ ICDD Card No.). در این سیستم، تابش پرتو از طریق لامپ مس انجام می‌شود. طول موج منبع پرتو Cu برابر $1/5465$ آنگستروم و نوع انتشار آن α است. ضخامت، نرخ رسوب، توپوگرافی سطح و میزان زبری سطح نمونه‌ها در معیار RMS، با استفاده از میکروسکوپ نیروی اتمی مدل DME DS (sheet resistance) 95-50 E اندازه‌گیری شده‌است. مقاومت ورقه‌ای (sheet resistance) لایه‌های نازک ITO به کمک تکنیک پروب چهارمیله مشخص شده و



شکل ۲: تصویر گرفته‌شده در ابعاد $1000 \times 1000 \text{ nm}$ از سطح نمونه لایه‌نشانی‌شده در توان ۱۰۰W، (الف) در دو بعد، (ب) در سه بعد

چسبندگی اتم‌های اکسیژن در نتیجه بمباران یون‌های پرنرژی است (بمباران یون‌های پرنرژی Ar^+). در این تحقیق به منظور بررسی و مطالعه اثر فاصله الکترودها بر انرژی جنبشی یون‌ها و الکترون‌ها از نرم‌افزار شبیه‌سازی پلاسمای xpdp1 استفاده شده است [۲۵-۲۸]. نتایج حاصل از این شبیه‌سازی در شکل ۴ نشان داده شده است. در واقع، جهت‌گیری ترجیحی رشد لایه نازک ITO در راستای صفحه کریستالوگرافی (۴۰۰)، در فواصل کمتر الکترودها، به دلیل سازگاری بیش‌تر این صفحه با سایت‌های خالی اکسیژن است. از سوی دیگر با افزایش فاصله الکترودها، شدت پیک صفحه کریستالوگرافی (۲۲۲) به شدت کاهش یافته که حاکی از



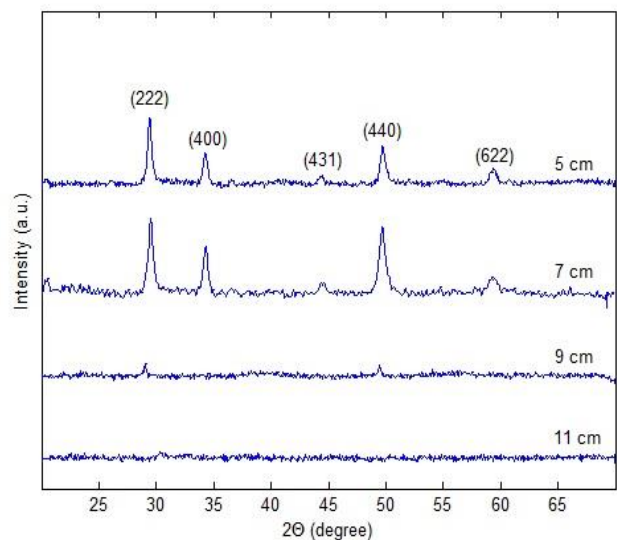
رسوب لایه نازک ITO با ساختار آمورف است.

شکل ۴: انرژی جنبشی یون‌ها و الکترون‌ها در فضای میان الکترودها. شبیه‌سازی به کمک نرم‌افزار xpdp1 انجام شده است. (انرژی جنبشی الکترون‌ها با خط ممتد و در محور سمت راست و انرژی جنبشی یون‌ها با نقطه چین و در محور سمت چپ نمایش داده شده است). شبیه‌سازی در $V=400$ v، $P=0.5$ mbar، $B=0.1$ T و برای $L=2, 3, 5$ cm انجام شده است.

در این تحقیق خصوصیات الکتریکی لایه‌های نازک ITO به کمک سیستم پروب چهار میله مورد بررسی قرار گرفته است. مقدار مقاومت ورقه‌ای و مقاومت ویژه نمونه‌های لایه‌نشانی شده در توان‌های مختلف در جدول ۱ ارائه شده‌اند. شکل ۵ روند تغییرات مقاومت ورقه‌ای را بر حسب توان DC برای نمونه‌های ITO نشان می‌دهد.

طبق نتایج حاصل از آنالیزهای AFM و XRD، افزایش خواص کریستالی فیلم با کاهش فاصله الکترودها، توجیه‌کننده کاهش مقاومت ورقه‌ای فیلم است. در واقع با توجه به این که هر سایت خالی اکسیژن الکترون به باند هدایت اضافه می‌کند، افزایش سایت‌های خالی اکسیژن با کاهش فاصله الکترودها، افزایش چگالی حامل‌ها و در نتیجه کاهش مقاومت ورقه‌ای را به دنبال خواهد داشت. در این میان، اگرچه تصاویر AFM نمونه رسوب‌یافته در فاصله $L=5$ cm وجود کریستالیت‌های بزرگ‌تری در ساختار لایه نازک را نشان می‌دهد، اما وجود مراکز پراکندگی مربوط به مرز ستون‌های کریستالی در ساختار این لایه سبب می‌گردد

شکل ۳ الگوهای پراش پرتو X را برای لایه‌های نازک ITO در فواصل ۵، ۷، ۹ و ۱۱ cm الکترودها را نشان می‌دهد. همان‌گونه که قبلاً نیز بدان اشاره شد، به منظور کاهش اثر مخرب فشار، هر یک از نمونه‌ها در حداقل فشار کاری ممکن به منظور خودنگهداری پلاسمای رسوب یافته‌اند. از آنجایی که انرژی جنبشی ذرات اسپاتر شده در نواحی حرارتی و دیفیوژن کاملاً متفاوت است، ساختار میکروسکوپی و خصوصیات لایه نازک ITO رسوب‌یافته در این دو ناحیه نیز متفاوت خواهد بود. در واقع، در فواصل بسیار دور الکترودها، لایه نازک رسوب یافته از نقطه‌نظر جهت‌های کریستالی خود، رفتاری تصادفی و غیرقابل پیش‌بینی داشته و شدت پیک‌ها در آنالیز XRD بسیار ضعیف است. این اثر حاکی از کاهش کسر کریستالی لایه نازک، در فواصل بسیار دور الکترودها است.



شکل ۳: الگوهای پراش پرتو X لایه‌های نازک ITO در فواصل مختلف الکترودها

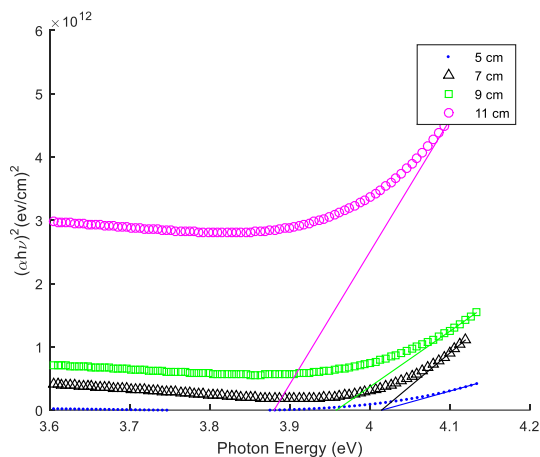
با کاهش فاصله الکترودها، افزایش انرژی حاصل از ارتعاش یون‌ها در پلاسمای منجر به انتقال حرارت به زیرلایه و افزایش دمای زیرلایه خواهد شد. این امر افزایش سایت‌های خالی اکسیژن را به دنبال خواهد داشت. چراکه انتقال انرژی حرارتی به زیرلایه، احتمال شکسته شدن پیوندهای اکسیژنی و خروج آن‌ها از لایه نازک را افزایش خواهد داد. با توجه به نتایج حاصل از الگوی پراش نمونه‌های ITO (شکل ۳)، با کاهش فاصله الکترودها و در نتیجه افزایش انرژی جنبشی یون‌های برخوردی به زیرلایه، خواص کریستالی لایه با جهت‌گیری ترجیحی صفحه (۴۰۰) افزایش خواهد یافت. علاوه بر این، با توجه به این که، تهی‌جای اکسیژن نقش مهمی در دیفیوژن دیگر اتم‌ها در این سایت‌های خالی دارد، رشد لایه نازک ITO در فواصل کمتر الکترودها، در راستای صفحات کریستالوگرافی (۲۲۲)، (۴۴۰)، (۶۲۲) و (۴۳۱) نیز مشاهده می‌شود. همان‌گونه که ذکر شد، جهت‌گیری ترجیحی رشد لایه در راستای صفحه کریستالوگرافی (۴۰۰) در فواصل کمتر الکترودها، به دلیل کاهش ضریب

نوسانات مشاهده شده در طیف عبوردهی نوری نمونه‌هایی که در فواصل ۵، ۷ و ۹cm الکترودها از هم رسوب یافته‌اند، ناشی از عدم تطابق ضریب شکست زیرلایه و لایه نازک است. از سوی دیگر، عدم وجود این نوسانات در نمونه مربوط به $L=11\text{cm}$ حاکی از رسوب این لایه نازک با بی‌نظمی بالا و در فاز آمورف است (زیرلایه از نوع شیشه و دارای پیکربندی آمورف است). در این میان کاهش ۱۰٪ شفافیت لایه نازک در $L=5\text{cm}$ به دلیل افزایش ضخامت آن است.

مقدار متوسط محاسبه شده برای طیف عبوردهی نوری (T_{av}) و نیز پهنای باند نوری (E_g) لایه‌های ITO در فواصل مختلف الکترودها در جدول ۱ نشان داده شده‌اند. مطابق مقادیر محاسبه شده در این جدول، افزایش الکترون‌های آزاد برای لایه‌هایی که در فواصل کمتر الکترودها رسوب یافته‌اند، منجر به افزایش پهنای باند نوری بر طبق رابطه پرستین-ماس^۶ خواهد شد:

$$E_g - E_{go} = \Delta E_{gBM} = \frac{h}{2m^*} (3\pi^2 n_e)^{2/3} \quad (2)$$

که در آن E_{go} پهنای باند ذاتی^۷ ماده، m^* جرم مؤثر الکترون و n_e چگالی حامل‌های الکترونی است.



شکل ۷: نمودار^۲ (ahv) برحسب hv برای لایه‌های نازک ITO در فواصل مختلف الکترودها و در توان ۱۰۰ W و فشار ۳۲mTorr.

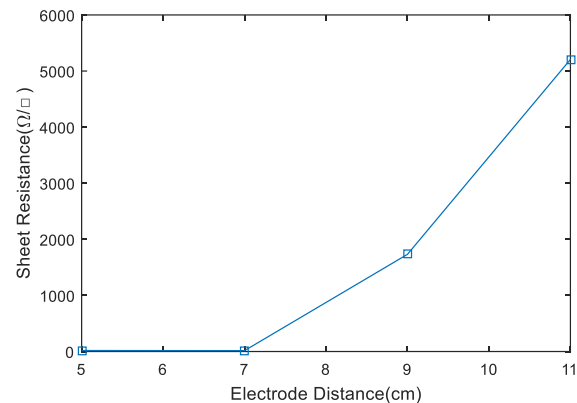
طبق نتایج ارائه شده در جدول ۱، میزان T_{av} در فواصل مختلف الکترودها علاوه بر وجود تهی‌جای‌های اکسیژن به‌عنوان مراکز پراکندگی نوری در لایه نازک، مرتبط با ضخامت لایه نازک و در نتیجه کاهش مسیر پراکندگی نوری^۸ است. ضریب جذب نوری (α) به صورت تابعی از میزان عبوردهی نوری (T) و میزان بازتاب^۹ (R) در رابطه (۳) ارائه شده-

$$\alpha = \frac{1}{t} \ln \left\{ \frac{(1-R)^2}{2T} + \left[\frac{(1-R)^2}{2T} + R^2 \right]^{1/2} \right\} \quad (3)$$

که در آن t ضخامت لایه نازک ITO است. در صورتی که در طیف به دست آمده از نمونه ITO، از بازتاب در ناحیه طول موج UV صرف نظر شود، ضریب جذب را می‌توان طبق رابطه (۴) محاسبه نمود:

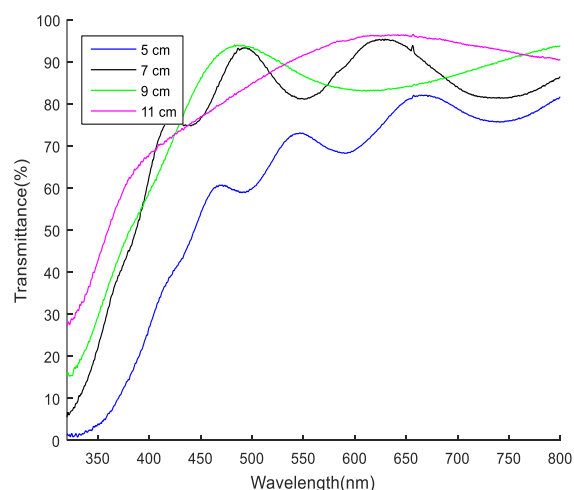
$$\alpha = \frac{1}{t} \ln \left(\frac{1}{T} \right) \quad (4)$$

تا مقاومت ورقه‌ای لایه نازک در این فاصله ($17/7 \Omega/\square$)، اندکی بیش از لایه نازک رسوب یافته در فاصله $L=7\text{cm}$ ($16 \Omega/\square$) باشد. از سوی دیگر افزایش فاصله الکترودها به بیش از ۷cm، اثر قابل ملاحظه‌ای در رشد مقاومت ورقه‌ای خواهد داشت زیرا انرژی اندک ذراتی که به سطح زیرلایه می‌رسند قادر به شکستن پیوند اکسیژن و آزاد ساختن آن نبوده و با کاهش تهی‌جای‌های اکسیژن از یک سو و رسوب لایه با بی‌نظمی بالا از - سوی دیگر، موجبات افزایش نمایی مقاومت ورقه‌ای را مهیا می‌سازند. خصوصیات الکتریکی لایه‌های رسوب یافته در جدول ۱ ارائه شده‌اند.



شکل ۵: مقاومت ورقه‌ای لایه‌های نازک ITO به صورت تابعی از توان رسوب در حین فرآیند لایه‌نشانی در حداقل فشار لازم جهت تضمین خودنگهداری پلاسما.

طیف عبوردهی نوری در ناحیه طول موج ۳۰۰-۸۰۰ nm و نمودار^۲ (ahv) برحسب hv برای لایه‌های نازک ITO در توان ۱۰۰ W و فشار ۳۲ mTorr و در فواصل مختلف الکترودها به ترتیب در شکل ۶ و ۷ نشان داده شده است.



شکل ۶: طیف عبوردهی نوری در ناحیه طول موج ۳۰۰-۸۰۰ nm برای لایه‌های نازک ITO در فواصل مختلف الکترودها و در توان ۱۰۰ W و فشار ۳۲mTorr.

کیفیت $1.0 \times 10^{-1} \Omega^{-1}$ در میان نمونه‌های رسوب‌یافته در فواصل مختلف الکترودها می‌باشد.

۴- نتیجه‌گیری

در این تحقیق لایه‌های نازک اکسید ایندیوم-قلع (ITO)، با هدف بهبود خواص اپتوالکتریکی، به روش کندوپاش مگنترونی DC، بر بستر شیشه، در دمای اتاق و در محدوده فاصله الکترودها برابر ۵-۱۱ لایه‌نشانی شده‌اند. شبیه‌سازی اثر فاصله الکترودها بر انرژی جنبشی یون‌ها و الکترون‌ها در حدفاصل میان ماده هدف و زیرلایه، با استفاده از نرم‌افزار xpdp1، حاکی از کاهش انرژی ذرات با افزایش فاصله الکترودها است. با افزایش فاصله الکترودها، برخورد میان ذرات گاز یونیزه‌شده کاهش یافته و در نتیجه انرژی جنبشی یون‌هایی که به سمت زیرلایه شتاب گرفته‌اند نیز تحت تأثیر این امر کاهش خواهد یافت. این پدیده خواص کریستالی لایه‌های نازک ITO را به شدت تحت تأثیر قرار خواهد داد. به طوری که طبق نتایج عملی به دست آمده، نمونه رسوب‌یافته در فاصله ۱۱ cm ساختاری آمورف دارد. در این تحقیق، از تکنیک پراش پرتو X (XRD) و میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) برای آنالیز ساختاری لایه‌های نازک استفاده شده است. به کمک میکروسکوپ AFM، ضخامت نمونه‌ها در گستره فاصله ۵-۱۱ الکترودها، در محدوده ۱۱۰-۳۷۰ nm اندازه‌گیری شده‌اند. برای نمونه لایه‌نشانی شده در فواصل ۵، ۷، ۹ و ۱۱ cm الکترودها، به ترتیب برابر با 65 ± 5 nm، 50 ± 5 nm، 45 ± 5 nm و 40 ± 5 nm و جذر میانگین مربع میزان زبری سطح به ترتیب برابر با $2/69$ ، $1/93$ ، $1/97$ و $1/83$ است. طبق نتایج آنالیز XRD، از آنجایی که انرژی جنبشی ذرات اسپاتر شده در نواحی حرارتی و دیفیوژن کاملاً متفاوت است، ساختار میکروسکوپی و خصوصیات لایه نازک ITO رسوب‌یافته در این دو ناحیه نیز متفاوت خواهد بود. در واقع، در فواصل بسیار دور الکترودها، لایه نازک رسوب‌یافته از نقطه‌نظر جهات کریستالی خود، رفتاری تصادفی و غیرقابل پیش‌بینی داشته و شدت پیک‌ها در آنالیز XRD بسیار ضعیف است. باتوجه به نتایج حاصل از الگوی پراش نمونه‌های ITO، با کاهش فاصله الکترودها و در نتیجه افزایش انرژی جنبشی یون‌های برخوردی به زیرلایه، خواص کریستالی لایه با جهت‌گیری ترجیحی صفحه (۴۰۰) افزایش خواهد یافت.

مقاومت ورقه‌ای لایه‌های نازک ITO برای فاصله الکترودها برابر ۵، ۷، ۹ و ۱۱ cm، با استفاده از تکنیک پروب چهار میله به ترتیب برابر با $17/7$ ، 16 ، 1733 و $5207 \Omega/\square$ اندازه‌گیری شده‌اند. همچنین بررسی خواص اپتیکی لایه‌ها با استفاده از طیف‌سنجی فرابنفش-مرئی در محدوده $400-800$ nm، نشان داد که در گستره فواصل تحت بررسی میزان شفافیت لایه‌های نازک در محدوده $85-75\%$ متغیر است. نوسانات مشاهده‌شده در طیف عبوری نمونه‌های ۵-۱۱ cm مربوط به اختلاف ضریب شکست میان ITO و زیرلایه شیشه است. طبق نتایج به دست آمده در این تحقیق، برای لایه نازک ITO رسوب‌یافته در توان 100 W، فشار کاری 32 Torr و در فاصله الکترودها برابر با $L=7$ cm

ضریب جذب برای پهنای باند مستقیم^{۱۱} را می‌توان به صورت تابعی از انرژی فوتون براساس رابطه تائوک^{۱۱} نوشت [۲۹]:

$$(ahv)^2 = A(hv - E_g) \quad (5)$$

که در آن A وابسته به احتمال انتقال بین تراز هدایت و ظرفیت^{۱۲} hv انرژی فوتون و E_g پهنای باند نوری است. پهنای باند مستقیم را می‌توان با رسم $(ahv)^2$ بر حسب hv و سپس برون‌یابی^{۱۳} بخش خطی این نمودار در انرژی‌های زیاد به نقطه‌ای که در آن ضریب جذب صفر شود ($\alpha=0$)، به دست آورد. همان‌گونه که در شکل ۷ نشان داده شده است، با برون‌یابی انجام‌شده، مقادیر پهنای باند نوری برای نمونه‌های رسوب‌یافته در فواصل ۵، ۷، ۹ و ۱۱ cm الکترودها، به ترتیب برابر با $4/01$ ، $4/01$ ، $3/95$ و $3/88$ eV به دست می‌آید.

جدول ۱: خصوصیات میکروساختاری و اپتوالکتریکی لایه‌های نازک ITO رسوب‌یافته در فواصل مختلف الکترودها و در توان 100 W و فشار

۳۲mTorr				
فاصله الکترودها (cm)	۱۱	۹	۷	۵
متوسط اندازه دانه‌های کریستالی (nm)	40 ± 5	45 ± 5	50 ± 5	65 ± 5
میزان زبری سطح در معیار RMS (nm)	$1/47$	$1/93$	$1/97$	$2/69$
ضخامت (nm)	۱۱۰	۲۰۰	۲۳۰	۳۷۰
نرخ رسوب ($\text{\AA}/s$)	$1/83$	$3/33$	$3/83$	$6/16$
مقاومت ورقه‌ای (Ω/\square)	5207	1733	16	$17/7$
مقاومت ویژه ($\Omega\text{-cm} \times 10^{-4}$)	$572/77$	$346/60$	$3/68$	$6/54$
درصد عبوردهی نوری در ناحیه $400-800$ nm	75%	85%	82%	81%
پهنای باند نوری ($300-350$ nm-eV)	$3/88$	$3/95$	$4/01$	$4/01$
شاخص کیفیت هاک (Ω^{-1})	$2/3 \times 10^{-5}$	$7/9 \times 10^{-5}$	0.0123	0.031

در این تحقیق، به منظور ارزیابی و مقایسه کیفیت لایه‌های مختلف ITO، از نقطه‌نظر خصوصیات اپتوالکتریکی، از شاخص کیفیت هاک^{۱۴} [۳۱]، به عنوان یک معیار مورد قبول متداول، استفاده شده است:

$$\Phi_{TC} = \frac{T_{av}^{10}}{R_s} \quad (6)$$

که در آن T_{av} مقدار درصد متوسط طیف عبوردهی نوری در ناحیه طول موج $400-800$ nm و R_s مقاومت ورقه‌ای لایه نازک در واحد Ω/\square است. طبق نتایج به دست آمده در توان 100 W، فشار کاری 32 Torr و در فاصله الکترودها برابر با $L=7$ cm فیلم رسوب‌یافته دارای مقاومت ورقه‌ای برابر با $16 \Omega/\square$ ، میزان متوسط عبوردهی 85% و بیش‌ترین مقدار شاخص

- oxygen vacancy of hydrogen-doped indium tin oxide thin films”, *Thin Solid Films*, vol. 519, Issue 11, pp. 3557–3561, 2011.
- [13] Sh. Qamar Hussain, W. K. Oh, Sh. Ahn, A. H. Tuan Le, S. Kim, S. M. Iftiqar, S. Velumani, Y. Lee and J. Yi, “Highly transparent RF magnetron-sputtered indium tin oxide films for a-Si:H/c-Si heterojunction solar cells amorphous/crystalline silicon”, *Materials Science in Semiconductor Processing*, vol. 24, pp. 225-230, 2014.
- [14] Zhixuan Lv, Jindong Liu, Dengyao Wang, Hualong Tao, Weichao Chen, Haoting Sun, Yanfei He, Xin Zhang, Zhiyu Qu, Zicheng Han, Xuelin Guo, Shiping Zhao, Yunxian Cui, Hualin Wang, Shimin Liu, Chaoqian Liu, Nan Wang, Weiwei Jiang, Weiping Chai, Wanyu Ding, “A simple route to prepare (100) preferred orientation indium tin oxide film onto polyimide substrate by direct current pulsed magnetron sputtering”, *Materials Chemistry and Physics*, vol. 209, pp. 38-45, 2018.
- [15] Shumei Song, Tianlin Yang, Jingjing Liu, Yanqing Xin, Yanhui Li, Shenghao Han, “Rapid thermal annealing of ITO films”, *Applied Surface Science*, vol. 257, Issue 16, pp. 7061-7064, 2011.
- [16] Z. Qiao, Fabrication and study of ITO thin films prepared by magnetron sputtering, Ph.D thesis, University of Duisburg-Essen, May 2003.
- [17] W. F. Wu, B. S. Chiou and S. T. Hsieh, “Effect of sputtering power on the structural and optical properties of RF magnetron sputtered ITO films”, *Semicond. Sci. Technol*, vol. 9, pp. 1242-1249, 1994.
- [18] P. Gao, L. J. Meng, M. P. dos Santos, V. Teixeira and M. Andritschky, “Characterisation of ZrO₂ films prepared by rf reactive sputtering at different O₂ concentrations in the sputtering gases”, *Vacuum*, vol. 56, pp. 143-148, 2000.
- [19] C. V. R. Vasant Kumar and A. Mansingh, “Effect of target-substrate distance on the growth and properties of rf-sputtered indium tin oxide films”, *J. Appl. Phys.*, vol. 65, pp. 1270, 1989.
- [20] J. L. Perry, *Effects of sputter deposition parameters on stress in tantalum films with applications to chemical mechanical planarization of copper*. Ph.D Thesis. Rochester Institute of Technology, 2004.
- [21] C. V. R. Vasant kumar and A. Mansingh, “Effect of target-substrate distance on the growth and properties of rf-sputtered indium tin oxide films”, *J. Appl. Phys.*, vol.65, pp. 1270-1280, 1989.
- [22] M. Shakiba, A. Kosarian and E. Farshidi, “Effects of processing parameters on crystalline structure and optoelectronic behavior of DC sputtered ITO thin film”, *J Mater Sci: Mater Electron*, vol. 28, pp. 787-797, 2017.
- [23] A. Kosarian, M. Shakiba, and E. Farshidi, “Role of Sputtering Power on the Microstructural and Electro-Optical Properties of ITO Thin Films Deposited Using DC Sputtering Technique”, *IEEJ Transaction on Electrical and Electronic Engineering*, vol. 13, Issue 1, pp. 27-31, 2018.
- [24] M. DM, *Handbook of physical vapor deposition (PVD) processing*, William Andrew, United States of America, April 2010.
- [25] Xpdp1 v.3.5 plasma simulation software, *Plasma Theory and Simulation Group at University of California, Berkeley*.
- [26] C. K. Birdsall and A. B. Langdon, *Plasma Physics via Computer Simulations*. Adam Hilger, IOP Publishing, Bristol, 1991.
- [27] V. Vahedi, M. Surendra, “A Monte Carlo collision model for the particle-in-cell method: applications to argon and oxygen discharges”, *Computer Physics Communications*, vol. 87, Issues 1-2, pp. 179-198, 1995.
- [28] V. Vahedi, R. W. Stewart, and M. A. Lieberman, “Analytic model of the ion angular distribution in a collisional sheath”, *J. Vac. Sci. Technol. A*, vol. 11, Issue 4, pp. 1275, 1993.
- [29] D. K. Schroder, *Semiconductor material and device characterization*, Wiley, New York, 1990.
- [30] J. I. Pankove, *Optical process in semiconductors*, Dover Publications, Inc., New York, 1971.
- [31] G. Haacke, “New figure of merit for transparent conductors”, *J. Appl. Phys.*, vol. 47, pp. 4086, 1976.
- کمینه مقاومت ورقه‌های $16 \Omega/\square$ ، بی‌شینه میزان متوسط عبوردهی $0.85/\%$ و بیشترین شاخص کیفیت $10^{-1} \Omega^{-1}$ قابل دستیابی است.

سپاس‌گزاری

این پژوهش با پشتیبانی شرکت برق منطقه‌ای خوزستان انجام شده‌است.

مراجع

- [1] Ștefan Țălu, Slawomir Kulesza, Mirosław Bramowicz, Adam M. Pringle, Joshua M. Pearce, Marikkan Murugesan, Vishnukanthan Venkatachalapathy, J. Mayandi, “Micromorphology analysis of sputtered indium tin oxide fabricated with variable ambient combinations”, *Materials Letters*, vol. 220, pp. 169-171, 2018.
- [2] S.M. Rozati, T. Ganj, “Transparent conductive Sn-doped indium oxide thin films deposited by spray pyrolysis technique”, *Renewable Energy*, vol. 29, Issue 10, pp. 1671-1676, 2004.
- [3] Mirnmoy Misra, Deuk-Kyu Hwang, Yoon Cheol Kim, Jae-Min Myoung, Tae Il Lee, “Eco-friendly method of fabricating indium-tin-oxide thin films using pure aqueous sol-gel”, *Ceramics International*, vol. 44, Issue 3, pp. 2927-2933, 2018.
- [۴] محرم غیاثوند، محمد ناصر مقدسی، عباسعلی لطفی نیستانک، علیرضا نیک فرجام، بهبود عملکرد محفظه‌های الکترومغناطیسی غیر فلزی شفاف با استفاده از پوشش فیلم نانو لایه طلا، *مجله مهندسی برق دانشگاه تبریز*، دوره ۴۸، شماره ۱، صفحه ۲۰۵-۱۹۷، ۱۳۹۷.
- [5] Cristian Viespe, Ionut Nicolae, Cornelia Sima, Constantin Grigoriu, Rares Medianu, “ITO thin films deposited by advanced pulsed laser deposition”, *Thin Solid Films*, vol. 515, Issue 24, pp. 8771-8775, 2007.
- [6] Bibhuti Bhusan Sahu, Wen Long, Jeon Geon Han, “Highly conductive flexible ultra thin ITO nanoclusters prepared by 3-D confined magnetron sputtering at a low temperature”, *Scripta Materialia*, vol. 149, pp. 98-102, 2018.
- [7] C. David, B.P. Tinkham, P. Prunici, A. Panckow, “Highly conductive and transparent ITO films deposited at low temperatures by pulsed DC magnetron sputtering from ceramic and metallic rotary targets”, *Surface and Coatings Technology*, vol. 314, pp. 113-117, 2017.
- [8] A. Mohammadi Gheidari, F. Behafarid, G. Kavei, M. Kazemzad, “Effect of sputtering pressure and annealing temperature on the properties of indium tin oxide thin films”, *Materials Science and Engineering: B*, vol. 136, Issue 1, pp. 37-40, 2007.
- [9] M. Marikkannan, M. Subramanian, J. Mayandi, M. Tanemura, V. Vishnukanthan, and J. M. Pearce, “Effect of ambient combinations of argon, oxygen, and hydrogen on the properties of DC magnetron sputtered indium tin oxide films”, *AIP Advances*, vol. 5, 2015.
- [10] K.P. Sabin, A. Carmel Mary Esther, H.D. Shashikala, Arjun Dey, N. Sridhara, Anand Kumar Sharma, Harish C. Barshilia, “Environmental stability of transparent and conducting ITO thin films coated on flexible FEP and Kapton® substrates for spacecraft applications”, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, vol. 176, pp. 134-141, 2018.
- [11] Huafei Guo, Kezhi Zhang, Xuguang Jia, Changhao Ma, Ningyi Yuan, Jianing Ding, “Effect of ITO film deposition conditions on ITO and CdS films of semiconductor solar cells”, *Optik - International Journal for Light and Electron Optics*, vol. 140, pp. 322-330, 2017.
- [12] K. Okada, Sh. Kohiki, S. Luo, D. Sekiba, S. Ishii, M. Mitome, A. Kohno, T. Tajiri and F. Shoji, “Correlation between resistivity and

زیر نویس ها

8 optical scattering path
9 reflectance
10 direct allowed transition
11 Tauc relation
12 transition probability
13 extrapolating
14 Haacke's figure of merit

1 thermal energy
2 thermalization distance
3 thermalization region
4 average initial energy
5vacancy
6 Burstein–Moss
7intrinsic band gap