

بررسی اثر پخت بر ناهمواری سطوح لایه‌های نازک ITO تهیه شده با روش تبخیر با باریکه الکترونی از طریق تکنیک شمارش - جعبه

داود رئوفی^۱، زهرا کلالی^{۲*}

۱- دانشیار، عضو هیأت علمی گروه فیزیک، دانشگاه بوعلی سینا همدان، همدان، ایران

۲- کارشناس ارشد فیزیک اتمی و مولکولی دانشگاه بوعلی سینا همدان، همدان، ایران

*zahrakalali@ymail.com

(تاریخ دریافت: ۹۱/۱۱/۱۲، تاریخ پذیرش: ۹۱/۱۲/۲۰)

چکیده

در این پژوهش، لایه‌های نازک اکسید ایندیوم آلاییده با قلع (ITO) به روش تبخیر با باریکه الکترونی بر روی بستره‌های شیشه‌ای در دمای اتاق تهیه شدند. در ادامه، یکی از لایه‌ها به عنوان مرجع نگه داشته شد و بقیه لایه‌ها در دماهای 200°C و 300°C به مدت یک ساعت پخت شدند. مطالعه ساختاری و مورفولوژیکی لایه‌های نازک تهیه شده به ترتیب با تکنیک‌های پراش سنخ پرتو-X و میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) انجام شد. روند تکامل ساختار سطح لایه‌ها در طول فرایندهای انباشت و پخت با روش‌های ریاضی بررسی گردید. بعد فرکانسالی سطوح لایه‌های نازک ITO با استفاده از روش شمارش - جعبه به صورت تابعی از دمای پخت محاسبه شد. یافته‌ها نشان داد که پخت لایه‌ها باعث تغییر در ناهمواری سطح لایه‌های نازک در طول فرایند پخت می‌شود.

واژه‌های کلیدی:

لایه نازک، بعد فرکانس، ITO.

۱- مقدمه

پایین و تراگسیلندگی نوری بالا در محدوده‌ی طول موج مرئی است. از اینرو، به منظور داشتن مشخصه‌های بهینه، یعنی شفافیت بالا و مقاومت سطحی پایین، پارامترهایی از قبیل ضخامت، نوع آلایش و میزان آلایش و دیگر شرایط انباشت می‌بایست بهینه شوند [۱]. در این زمینه برای تولید لایه‌های نازک ITO روش-های انباشت مختلفی از قبیل فرایند سل-ژل، کندوپاش مگنترونی جریان مستقیم DC، تبخیر گرمایی، کندوپاش با باریکه یونی، انباشت با پالس لیزری و غیره بکار رفته است [۱-۴]. مورفولوژی سطح یک مشخصه اساسی در لایه‌های نازک است، زیرا بسیاری از ویژگی‌های فیزیکی و شیمیایی مانند خواص

لایه‌های نازک اکسید ایندیوم آلاییده با قلع (ITO) عمدتاً به عنوان الکترودهای شفاف، المنت‌های حرارتی شفاف، الکترودهای پوششی در وسایل اپتوالکترونیک، وسایل الکترو-لومینسانس، نمایشگرهای کریستال مایع، سلول‌های خورشیدی و ... بواسطه ویژگی‌های یکتایشان مانند رسانایی خوب و تراگسیلندگی نوری بالا در ناحیه طول موج مرئی استفاده شده‌اند [۱-۴]. چسبندگی عالی به بستره (زیرلایه)، پایداری شیمیایی و خواص ناشی از رفتار نیم‌رسانای نوع-n و گاف نواری پهن (eV) $4/3 - 3/3$ از دیگر ویژگی‌های لایه ITO است [۱ - ۲]. همچنین کاربردهای جدید نیازمند لایه‌های ITO با مقاومت ویژه

بستره‌های تمیز شده بر روی بستره گیره‌های محفظه لایه نشانی، فشار اولیه محفظه خلا^۵ به مقدار $3/5 \times 10^{-5}$ mbar رسانیده شد. سپس با تنظیم آهنگ ورود گاز اکسیژن در سیستم لایه نشانی توسط اندازه‌گیر شار، کنترل آهنگ شار فشار جزئی اکسیژن (با درجه خلوص ۹۹/۹۹٪) در مقدار پایایی $1/6 \times 10^{-5}$ تنظیم گردید. لایه نشانی با آهنگ انباشت $0/1$ nm/s در دمای اتاق (25°C) انجام شد. ضخامت لایه‌ها (در حدود ۷۰ nm) توسط پایشگر بلور کوارتز سیستم لایه نشانی کنترل می‌شد. پس از اتمام لایه نشانی، یکی از لایه‌ها به عنوان مرجع نگه داشته شد و بقیه در یک کوره الکتریکی در دماهای مختلف 200°C و 300°C در مجاورت هوا به مدت یک ساعت حرارت‌دهی شدند. برای مطالعه مورفولوژی سطح لایه‌ها از یک دستگاه میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) در مد تماسی استفاده شد. روبش‌ها در مساحت $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ و با تفکیک 256×256 پیکسل انجام شد. ابتدا داده‌های تصاویر AFM به داده‌های ASCII تبدیل شد و سپس جهت محاسبه مورفولوژی سطح لایه‌ها مورد استفاده قرار گرفتند. مشخصه‌یابی لایه‌ها قبل و پس از بازپخت در دماهای مختلف بوسیله دستگاه پراش سنج پرتو- ایکس (از نوع D8 Advanced Bruker X-ray) در دمای اتاق در دانشگاه بو علی سینا همدان انجام شد. طیف‌های پراش پرتو- ایکس با استفاده از تکفام کننده $\text{CuK}\alpha$ ($\lambda=1/54 \text{ \AA}$)، در بازه روبش ($90^\circ - 15^\circ$) 2θ و با گام روبش ($2\theta / s$) $0/08$ در دمای اتاق اندازه‌گیری شدند.

۳- پردازش فرکتالی تصاویر

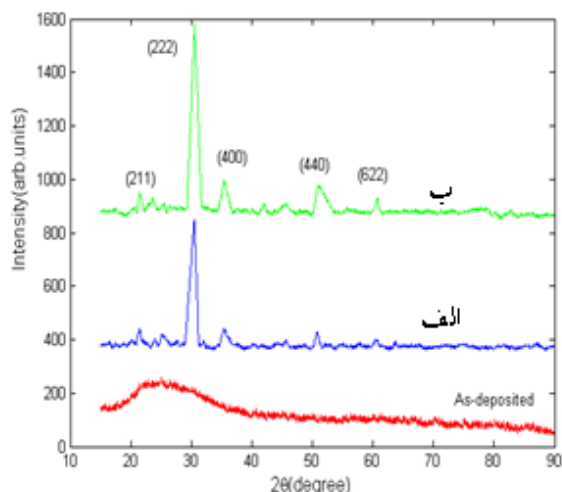
فرکتال‌ها اشیائی هستند که ساختارهای مشابه در محدوده مقیاس‌های طولی از خود نشان می‌دهند و می‌توان بعد غیر صحیح برای این اشیاء تعریف کرد. فرکتال‌ها و مولتی فرکتال‌ها همه جا در طبیعت موجود هستند [۱۱]. بسیاری از سیگنال‌های مشاهده پذیر که از سیستم‌های پیچیده ناشی می‌شوند، می‌توانند با مفاهیم و مدل‌هایی از نظریه فرکتالی مطالعه و بررسی شوند [۱۲]. فرکتال بودن معمولاً به مقیاس‌های طولی که شدیداً به

اپتیکی، الکتریکی و ... لایه‌های نازک از طریق مورفولوژی سطح کنترل می‌شود [۵-۷]. در تهیه لایه‌های نازک ITO، بسته به روش انباشت، لایه‌های نازک ITO می‌توانند شفافیت، رسانایی و مورفولوژی متفاوت داشته باشند. از طرفی، می‌دانیم که مورفولوژی سطح لایه‌های نازک ITO یک ویژگی مهم در بسیاری از کاربردها از قبیل OLEDها می‌باشد و تأثیر بسزایی بر عملکرد آن دارد. اخیراً مشخص شده است که همبستگی شدیدی بین مورفولوژی سطح یک لایه و بعد فرکتالی آن، که می‌تواند بعنوان پارامتری اساسی در محاسبه کارایی آن محسوب شود، وجود دارد [۸-۹].

در توصیف سطح لایه نازک، مورفولوژی سطح لایه معمولاً به صورت میکروگراف‌هایی (تصاویری) در مقیاس خاکستری مورد استفاده قرار می‌گیرد که در آن روشی پیکسل‌های تصویر به شکل پستی و بلندی‌های سطح وابسته است. سیگنال‌های دوبعدی (یعنی تصاویر با دو بعد فضایی x و y سطوح خاکستری) را می‌توان به صورت پستی و بلندی‌هایی از سطوح به راحتی ایجاد کرد. با این حال، آنالیز و پردازش این تصویر در مقیاس خاکستری برای لایه‌های نازک ITO هنوز به طور کامل بررسی نشده است [۱۰].

۲- روش انجام آزمایش

در این پژوهش برای تهیه لایه‌های نازک ITO، به سبب نقطه ذوب بالای مواد تشکیل دهنده ITO یعنی In_2O_3 و SnO_2)، از روش تبخیر با باریکه الکترونی که مناسبتر از روش تبخیر حرارتی می‌باشد استفاده شده است. ماده هدف (قرص جامد) تهیه شده از شرکت Merk آلمان، با نسبت‌های وزنی $90\% \text{In}_2\text{O}_3$ (اکسید ایندیوم) و $10\% \text{SnO}_2$ (اکسید قلع) به عنوان چشمه تبخیر مورد استفاده قرار گرفت. بستره‌های شیشه‌ای قبل از لایه نشانی در حمام اسیدی و آب اکسیژنه به مدت ۳۰ دقیقه غوطه‌ور و سپس شستشو و خشک شدند. همچنین، برای اطمینان از عدم وجود چربی‌های احتمالی بر روی بستره‌های آنها در یک دستگاه ماوراء صوت در حمام الکل اتیلیک چربی زدایی شدند، با نصب



شکل (۱): الگوهای پراش XRD لایه‌های نازک ITO (الف): پس از انباشت در دمای 200°C ، (ب) پس از پخت در دمای 300°C .

در شکل (۱) قله‌های پراش از صفحات کریستالی (۲۱۱)، (۲۲۲)، (۴۰۰)، (۴۴۰) و (۶۲۲) برای لایه‌های پخت شده نشان داده شده است. وجود قله پراش (۲۲۲) در الگوهای پراش XRD لایه‌های ITO پخت شده آشکارا تشکیل دانه‌های چند کریستالی در طول فرایند پخت را نشان می‌دهد. صفحه (۲۲۲) شدیدترین قله را برای همه لایه‌های ITO پخت شده مورد مطالعه دارد.

۴-۲- خواص مورفولوژیکی

مورفولوژی سطح لایه‌های نازک ITO قبل و پس از عملیات پخت با AFM مورد مطالعه قرار گرفته است. شکل (۲)، (الف) - (ج)، تصاویر AFM سه بعدی لایه‌های نازک ITO انباشت شده بر بستره شیشه‌ای، به ترتیب (الف) پس از انباشت، (ب) پس از پخت در دمای 200°C ، (ج) پس از پخت در دمای 300°C را نشان می‌دهد. تصاویر نشان می‌دهند که لایه‌ها متراکم شده و اندازه دانه در طول سطح نمونه با افزایش دمای پخت افزایش می‌یابد، اما ساختار اصلی (متخلخل و دانه‌ای) بدون تغییر باقی می‌ماند. همچنین، سطح همه لایه‌ها به میزان معینی ناهمواری از خود نشان می‌دهند و با افزایش بیشتر دمای پخت ناهمواری سطح (RMS) از مقدار 0.78 به مقدار 2.96 افزایش می‌یابد. به

ماهیت مواد (مثلاً، ITO در این پژوهش) و روش تهیه بستگی دارد محدود می‌شود. معمولاً، سطوح تجربی در مقیاس‌های طولی معینی $R_{\min} < R < R_{\max}$ ، فرکتال هستند، بطوریکه R_{\min} و R_{\max} به ترتیب محدوده بالایی و پایینی رفتار فرکتالی را نشان می‌دهند. سطوح در خارج از این محدوده به صورت سطحی صاف و هموار رفتار می‌کند. بعد فرکتال D_f یک سطح را می‌توان با تکنیک‌های مختلفی محاسبه کرد. برای مثال، رهیافت تابع ارتفاع - ارتفاع برای توصیف خواص مقیاس‌بندی لایه‌های نازک ITO [۱۳] به کار گرفته شده است. تکنیک بکار برده شده در این کار بر اساس روش شمارش - جعبه است. ابتدا جعبه‌هایی با اندازه ε ($\varepsilon \leq 1$) تصویر را می‌پوشانند. می‌توان دید که تعداد جعبه‌ها $n(\varepsilon)$ که پیکسل‌هایی با ارتفاع غیر صفر دارند، از رابطه مقیاس‌بندی زیر پیروی می‌کنند [۱۴-۱۵]:

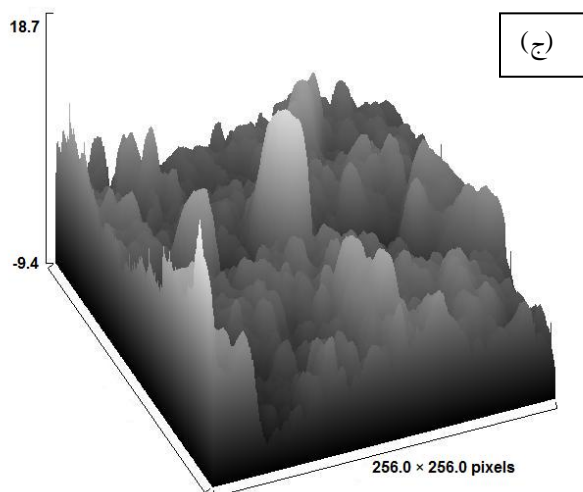
$$n(\varepsilon) \sim \varepsilon^{-D_f} \quad (1)$$

با تغییر اندازه جعبه، می‌توان یک سری از ε و $n(\varepsilon)$ بدست آورد. تصاویری را می‌توان به صورت فرکتال در نظر گرفت که از رسم $\ln(n(\varepsilon))$ بر حسب $\ln(\varepsilon)$ خط مستقیمی حاصل شود. شیب این خط بعد فرکتال D_f را بدست می‌دهد.

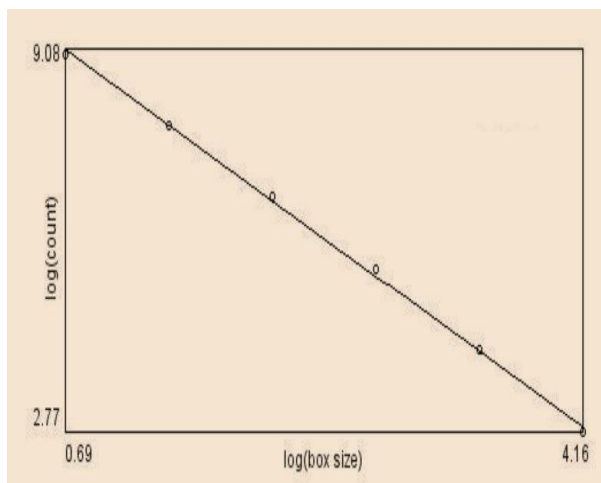
۴- بحث و یافته‌ها

۴-۱- خواص ساختاری

شکل (۱) الگوهای پراش XRD لایه‌های نازک ITO را برای لایه پس از انباشت و لایه‌های پخت شده به ترتیب در دماهای مختلف 200°C و 300°C (شکل (الف-۱) و شکل (ب-۱)) نشان می‌دهد. تغییر در الگوهای پراش XRD نمونه‌ها بواسطه فرایند پخت را می‌توان به وضوح در شکل (۱) مشاهده کرد.



شکل (۲): تصاویر AFM سه بعدی لایه‌های نازک ITO، (الف) پس از انباشت، (ب و ج) به ترتیب پس از پخت در دماهای ۲۰۰ °C و ۳۰۰ °C.

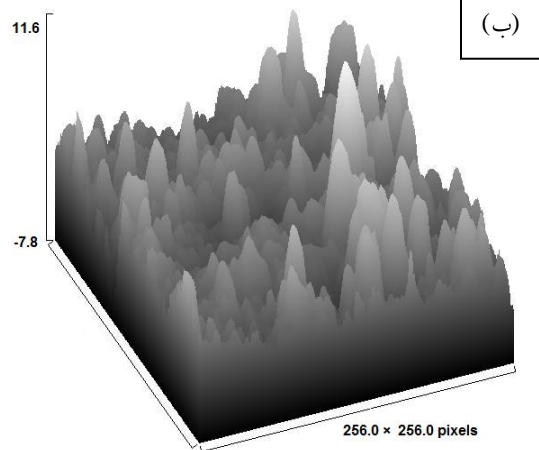
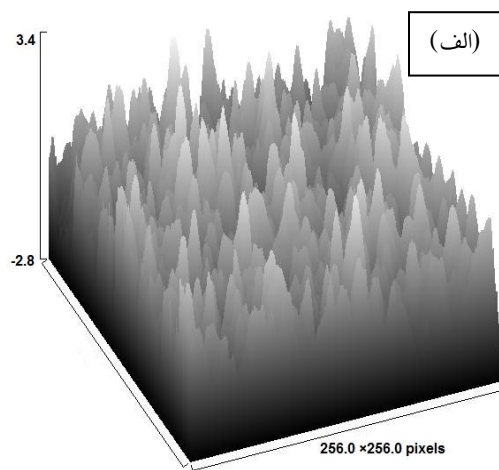


شکل (۳): رسم $\ln-\ln$ تعداد جعبه‌ها $n(\varepsilon)$ به صورت تابعی از اندازه جعبه ε برای لایه پخت شده در دمای ۳۰۰ °C. منحنی به رفتار قانون-توانی با نمای $D_f = -2/785$ اشاره می‌کند.

بر اساس معادله (۱)، رسم $\ln-\ln$ منحنی $\ln(n(\varepsilon))$ نسبت به $\ln(\varepsilon)$ خط مستقیمی است که به سادگی نشان می‌دهد $n(\varepsilon)$ با ε^{-D_f} متناسب است. بعد فرکتال را می‌توان با برازش (fitting) منحنی $n(\varepsilon)$ بدست آورد ($-D_f$ شیب). طبق معادله (۱)، بعد فرکتال لایه‌ها D_f (برای $m=1,2,\dots,6$ ، $\varepsilon = 2^m$) به ترتیب مقادیر ۲/۶۴، ۲/۶۸ و ۲/۷۸ بدست آمد. شکل (۳) نتیجه محاسبه شمارش-جعبه برای لایه نازک ITO پخت شده در دمای ۳۰۰ °C را نشان می‌دهد. با این وجود، با استفاده از این

منظور محاسبه بعد فرکتالی سطوح لایه‌های نازک ITO معادله (۱)، برای تصاویر AFM در مقیاس 256×256 ، به کار برده شد. در این نوع آنالیز، یک آرایه سه بعدی از مکعب‌ها (جعبه‌ها) بر تصویر سطح سه بعدی برهم‌نهاد می‌شود به طوری‌که جعبه‌ها سطح را کاملاً بپوشانند.

اندازه جعبه ε تغییر می‌کند و سپس تعداد جعبه‌های $n(\varepsilon)$ پوشاننده سطح برای هر مقدار ε محاسبه می‌شود. شکل (۳) تعداد جعبه‌های $n(\varepsilon)$ به کار برده شده برای پوشیدن سطحی با اندازه خطی $R=1000$ nm را (در مقیاس لگاریتمی) به عنوان تابعی از اندازه سلول (جعبه) ε نشان می‌دهد.

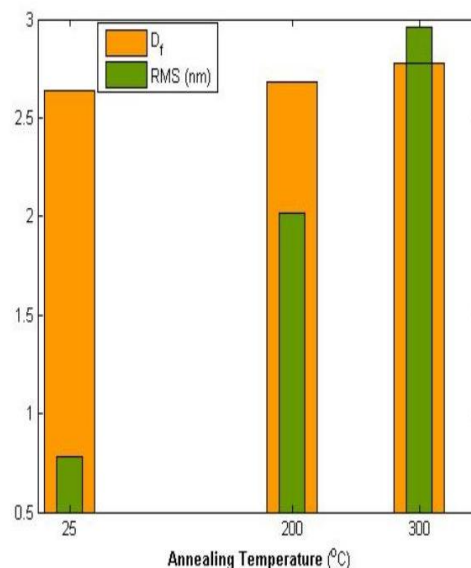


شمارش - جعبه می‌توان برای مطالعه مورفولوژی سطح لایه‌های نازک بهره گرفت.

۶- مراجع

- [1] H. R. Fallah, M. Ghasemia, A. Hassanzadeh & H. Steki, "The effect of deposition rate on electrical, optical and structural properties of tin-doped indium oxide (ITO) films on glass at low substrate temperature". *Physica. B*, Vol. 373, pp. 274-279, 2006.
- [2] J. Lee, D. Lim, K. Yang & W. Choi, "Influence of different plasma treatments on electrical and optical properties on sputtered AZO and ITO films". *Journal of Crystal Growth*, Vol. 326, pp. 50-57, 2011.
- [3] H. R. Fallah, M. Ghasemia & A. Hassanzadeh, "Influence of heat treatment on structural electrical, impedance and optical properties of nanocrystalline ITO films grown on glass at room temperature prepared by electron beam evaporation". *Physica. E*, Vol. 39, pp. 69-74, 2007.
- [4] V. Senthilkumar, P. Vickraman, "Annealing temperature dependent on structural, optical and electrical properties of indium oxide thin films deposited by electron beam evaporation method". *Current. Application. Physics*, Vol. 10, pp. 880-885, 2010.
- [5] W. Yuan, B. Xuanyu & X. Kewei, "Surface anisotropy characterization and microstructure of Cu-Wthin films at different annealing temperatures", *Physica B*, Vol. 349, pp. 10-18, 2006.
- [6] K.T. Lam, L.W. Ji, "Fractal analysis of InGaN self-assemble quantum dots grown by MOCVD", *Microelectronics Journal*, Vol. 38, pp. 905-909, 2007.
- [7] K.T. Lam, "Multifractal Spectra of INGaN/GaN Self-Assembled Quantum Dots Films", *J. Nanotechnol.Eng. Med.*, Vol. 1, pp. 031002-031008, 2010.
- [8] S. H. Mohamed, F. M. EL. Hossary, G. A. Gamal & M. M. Kahlid, "Properties of Indium Tin Oxide Thin Films Deposited on Polymer Substrates", *Acta. Physics, Polonica A.*, vol. 115, pp. 704-708,

اندازه‌های جعبه می‌توان بعد فرکتال را تخمینی بدست آورد، که علتش قابل مقایسه بودن اندازه جعبه‌ها در مقایسه با اندازه دانه‌های تشکیل شده بر سطح است.



شکل (۴): بعد فرکتال و RMS سطح لایه‌های نازک ITO بر حسب دماهای مختلف پخت.

بنابراین، در این رهیافت، برای پرهیز از خطا در محاسبه D_f به نمونه‌های با اندازه خطی بلندتر نیاز می‌باشد. تغییرات بعد فرکتال سطح لایه‌های نازک ITO نسبت به دمای پخت در شکل (۴) نشان داده شده است. تغییرات بعد فرکتال متناظر با تغییرات مورفولوژی سطح و ناشی از اثر عملیات پخت لایه‌ها است.

۵- نتیجه‌گیری

در کار حاضر، خواص ساختاری لایه‌های نازک ITO با تکنیک XRD مطالعه گردید، نتایج یافته‌های XRD نشان می‌دهد که لایه‌های نازک ITO با عملیات پخت، کریستالی می‌شوند. همچنین، تصاویر AFM لایه‌ها قبل و پس از پخت تشکیل سطوح دانه‌ای متخلخل را نمایان می‌سازد. مقادیر بعد فرکتالی لایه‌ها، که به روش شمارش - جعبه تعیین شدند، تأییدی بر ناهمواری سطوح لایه‌ها می‌باشد، که در توافق خوبی نیز با افزایش RMS در فرایند پخت لایه‌ها است. از اینرو، از روش

- Physica A, Vol. 387, pp. 6452–6462, 2008.
- [13] D. Raoufi, H. R. Fallah, A. Kiasatpour & A. S. Hassan Rozatian, "Surface characterization and microstructure of ITO thin films at different annealing temperatures. Applied. Surface. Science, Vol. 253, pp. 9085–9090, 2007.
- [14] X. Sun, Z. Fu & Z. Wu, "Fractal processing of AFM images of rough ZnO films", Materials Characterization, Vol. 48, pp. 169–175, 2002.
- [15] Provata, P. Falaras & A. Xagas, "Fractal features of titanium oxide surfaces", Chemical Physics Letters, Vol. 297, pp. 484–490, 1998.
- [9] D. Raoufi, "Morphological characterization of ITO thin films surfaces", Applied. Surface. Science, Vol. 255, pp. 3682–3686, 2009.
- [10] W. Yuan, B. Xuanyu & X. Kewei, "Surface anisotropy characterization and microstructure of Cu–Wthin films at different annealing temperatures", Physica. B., Vol. 349, pp. 10–18, 2004.
- [11] B. B. Mandelbrot, The Fractal Geometry of Nature, Freeman, San Francisco, 1982.
- [12] J. Alvarez-Ramirez, J. C. Echeverria, E & Rodriguez, "Performance of a high-dimensional R/S method for Hurst exponent estimation".

[1] Indium tin oxide