

L'influence de la pression des gazes dans un plasma de la pulvérisant cathodique DC sur les propriétés des couches minces de ZnO

A. BOUGHELOUT^{1,2}, A. BENSOUILAH², L. CHABANE², N. ZEBBAR²,
A. HAMMOUDA¹ et M. KECHOUANE²

1 Welding and NDT Research Centre (CSC) BP 64 CHERAGA-ALGERIA

2 Laboratoire de Physique des Matériaux ; Equipe « Couches Minces et Semi-conducteurs »

Faculté de Physique, USTHB, B.P. 32, El Alia, 16111 Bab-Ezzouar, Alger, ALGERIE

Tel/Fax : 021 24 75 28

Email: abderrahmaneough@gmail.com

Résumé : Des couches minces de ZnO ont été déposées par pulvérisation (DC) d'une cible métallique de Zinc, en utilisant un plasma d'un mélange de gaz (argon, oxygène) avec des pressions variantes de l'Oxygène et à une température de 100 °C. Ces couches sont caractérisées par la transmission optique UV visible et les mesures de conductivité électrique. Les mesures de transmission optique des couches montrent que la transmission optique est très élevée (facteur de transmission) dans la gamme de longueurs d'ondes située entre 400 nm et 2500 nm et elle variée en fonction de la pression d'oxygène. Les mesures électriques I-V et I-T mettent en évidence l'effet de la pression d'oxygène dans le plasma sur la conductivité et l'énergie d'activation des couches élaborées.

Mots-clés : pulvérisation réactive, oxyde de zinc, propriétés optiques, caractérisation structurale, conductivité électrique.

INTRODUCTION

Incontestablement, l'oxygène est un élément qui influe fortement sur la résistivité des couches des différents oxydes métalliques et surtout sur les couches de ZnO, ainsi que sur leurs propriétés cristallographiques, morphologiques, optiques et électriques.

Les travaux d'Onuma et al. [1] ainsi que de Gordillo et al. [2] ont montré, que les valeurs de la résistivité et de la concentration de porteurs peuvent augmenter de 80% en diminuant la pression partielle d'oxygène, avec une réduction de la transmittance dans la région spectrale du bleu ; ce qui est un facteur limitant pour la fabrication de composants à photo-courant élevé.

En 2005, Dikovska et al. [3] montrent que la diminution de la pression d'oxygène diminuait la valeur de la transmission dans le visible.

En 2012, [4] ont étudié les effets de la pression d'oxygène au cours du dépôt, sur le photo-courant de fuite d'un transistor en couches minces ZnO (TFT). Ils montrent que ce photo-courant de fuite augmente avec la diminution de la pression d'oxygène et que la densité de pièges à électrons augmente.

La technique choisie dans ce travail permet de faire varier la présence de l'oxygène par le biais de la pression injectée et contrôlée par le manipulateur.

Résultats

1. Diffraction des rayons X

Les figures IV.1 présentent les diffractogrammes des trois échantillons synthétisés dans un plasma dont la teneur en oxygène va en croissance, de sorte que la pression finale de dépôt soit : 0.07, 0.7, puis 1.1 mbar

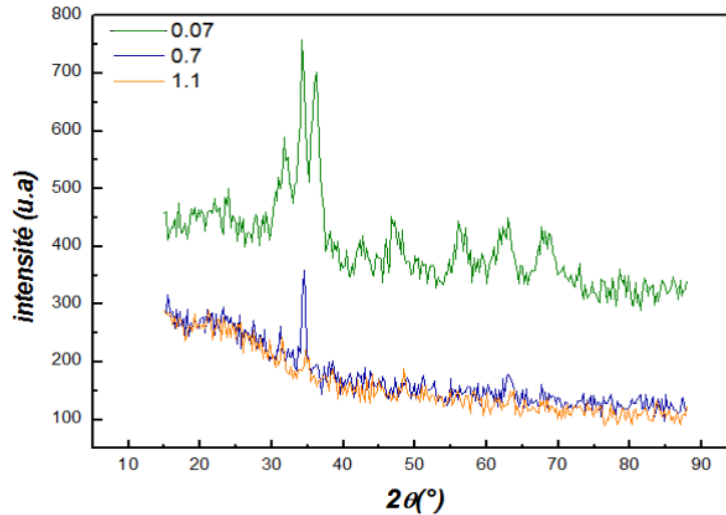


Figure IV.1 Diffractogrammes de 4 échantillons à différentes pressions

Nous assistons à la transition de films cristallins à des films partiellement cristallisés puis à des films globalement amorphes. La cristallinité est meilleure pour la pression ($P_{O_2}/P_{totale} = 28\%$). Dans la littérature la meilleure cristallinité est obtenue à une pression relative d'oxygène de 20%. [5]

2. Microscopie électronique à balayage

Les images obtenues par MEB (*figures IV.2a, 2b*) à différents grossissements, montrent que nos couches sont poreuses et granuleuses avec des cristallites de taille nanométrique variable selon la pression de dépôt.

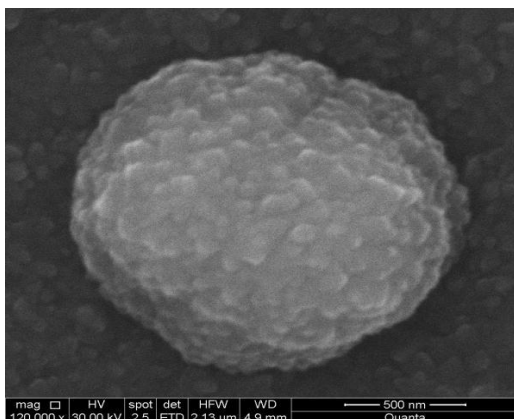


Figure IV.2 b Image MEB échantillon 0.07
grossie à 120 000 fois

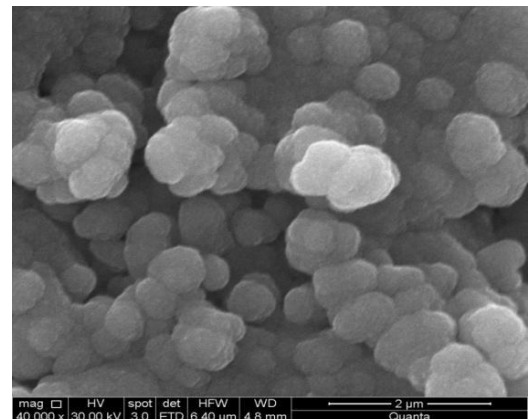


Figure IV.2 a Image MEB échantillon 0.07
grossie à 40 000 fois

3. Caractérisations optiques

Nous relevons de la figure IV.3 la présence d'une région de forte

transparence dans le domaine du visible avec une valeur comprise entre 75 à 85%. D'autre part, la région de forte absorption correspond à l'absorption fondamentale ($\lambda < 400\text{nm}$) dans les films de ZnO, qui est due à la transition électronique inter-bande.

Nous avons observé des franges d'interférences pour trois des échantillons. Ce qui indique que le film déposé est épais.

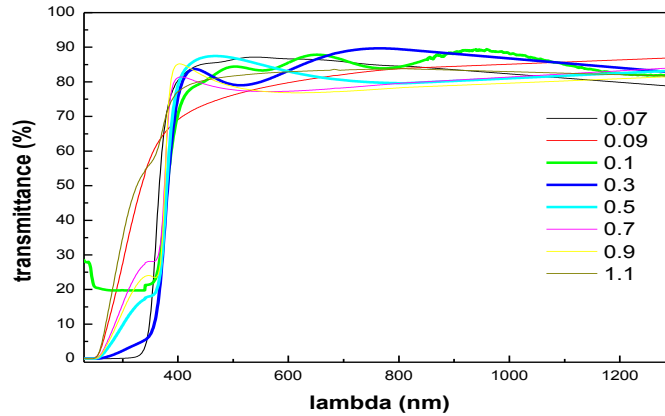


Figure IV.3 Spectres de transmittance

Nous remarquons sur la *figure IV.5* que le taux de dépôt décroît avec l'augmentation de la pression d'oxygène pour le domaine de pression étudié. Si nous examinons l'influence de la pression, il apparaît une forte décroissance pour les pressions les plus faibles (entre 0.07 et 0.1mbar). La décroissance devient moins franche pour les pressions les plus élevées entre (0.3 et 1.3mbar). Ceci est dû au fait que l'augmentation de la pression d'oxygène induit l'augmentation de la pression dans l'enceinte, qui se traduit par la diminution du libre parcours moyen des atomes éjectés de la cible (atomes de zinc), plus lourds, perdent toute leur énergie cinétique au cours des chocs avec les autres espèces et ne peuvent pas atteindre le substrat[6]. Nous pouvons nous attendre donc à des films plus riches en oxygène.

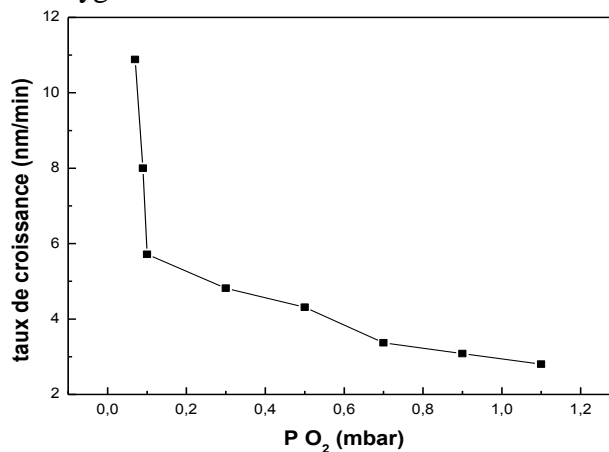
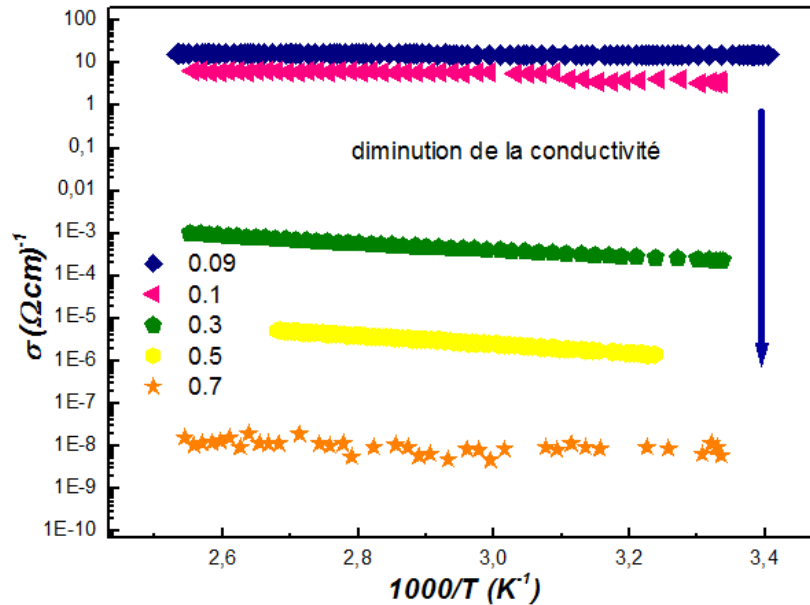


Figure IV.5 Evolution du taux de croissance en fonction de la pression

4. Caractérisations électriques

L'évolution de la conductivité électrique en échelle logarithmique, en

fonction de l'inverse de la température est sur la figure I.V.7



Figures IV.7 Evolution de la conductivité en fonction de l'inverse de la température

Les valeurs des énergies d'activation déduites exprimées en eV sont : 0.007, 0.026, 0.16, 0.20 et 0.22 respectivement. Nous observons une élévation de l'énergie d'activation avec l'augmentation de la pression d'oxygène. Cela exprime la diminution des porteurs libres n suite à la diminution d'atomes de zinc en interstice et/ou la diminution de lacunes d'oxygène.

La *figure IV.8* représente l'évolution de la résistivité en fonction de la pression d'oxygène. Nous remarquons que la résistivité de nos couches augmente avec l'augmentation de la pression d'oxygène. Nous constatons une plus forte augmentation de la résistivité au delà de la pression de 0.3mbar. Il faut signaler l'étendue des valeurs de la résistivité ($6.5 \cdot 10^{-2} - 10 \cdot 10^7 \Omega \cdot \text{cm}$).

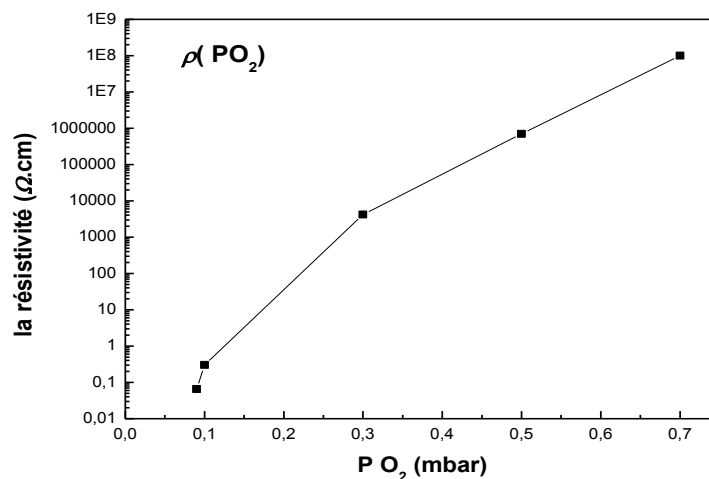


Figure IV.8 Evolution de la résistivité en fonction de la pression d'oxygène

CONCLUSION

Nous avons déposé des couches semi-conductrices d'oxyde de zinc par pulvérisation cathodique DC, en faisant varier la pression partielle du flux d'oxygène tout en maintenant la pression d'argon constante. Les propriétés structurales, optiques et électriques ont été analysées. Nous avons obtenu des couches polycristallines de structure hexagonale würtzite de ZnO. L'augmentation de la pression d'oxygène dans l'enceinte de dépôt a conduit à l'apparition d'une orientation préférentielle [002] dans une structure de mauvaise qualité cristalline et qui devient amorphe aux pressions les plus élevées. Les films présentent de très bonnes conductivités électriques pour les faibles pressions et voient leur résistivité augmenter avec l'augmentation de la pression d'oxygène. Ceci peut s'expliquer par l'excès d'oxygène introduit dans les couches. Tous les films déposés sont transparents dans le visible et présentent une très bonne transmittance. Nous avons montré que la pression partielle d'oxygène influence fortement les propriétés des films synthétisés.

En conclusion, nous pouvons dire qu'il y a une très bonne corrélation entre les résultats des différentes caractérisations. En effet tous les résultats montrent que les meilleures propriétés électriques, optiques et structurales sont obtenues pour de basses pressions d'oxygène.

Il a été constaté que la pression d'oxygène est un facteur clé, très important pour l'obtention de couches minces de ZnO de résistivité donnée selon l'application désirée. Lorsque la pression de pulvérisation est faible, il est facile de former des couches minces de ZnO transparentes et de bonnes conductivités électriques.

REFERENCES

- [1] Y.Onuma, K.Takeuchi, S.Ichikawa, M.Harada, H.Tanaka, A.Koizumi, Yum Miyaju, *Solar Energy Material & Solar cells* 69 (2001) 261-269.
- [2] G. Gordillo, C. Calderon properties of ZnO thin films prepared by reactive evaporation, *Solar Energy Materials & Solar Cells* 69 (2001) 251-260.
- [3] A. Og. Dikovska, P. A. Atanasov, C. Vasilev, I. G. Dimitrov, T. R. Stoyanov.
- [4] S.Shimakawa, Y.Kamada, T.Kawaharamura, D.Wang, C.Li, S.Fujita, T.Hirao, and M.Furuta, *Jpn. J. Appl. Phys.* 51 (2012) 03CB04.
- [5] M. Yuste, R. Escobar Galindo, I. Caretti, R. Torres and O. Sánchez, Influence of the oxygen partial pressure and post-deposition annealing on the structure and optical properties of ZnO films grown by dc magnetron sputtering at room temperature, *journal of physics d: applied physics*, (2012), *Appl. Phys.* 45 025303-025314.
- [6] A. Moustaghfir, «Elaboration et caractérisation de couches minces d'oxyde de zinc. Application à la photo protection du polycarbonate, école doctorale des sciences fondamentales», thèse de doctorat de l'université de blaise pascal, (novembre 2004).