

مشخصه یابی اپتیکی فیلم‌های نازک وانادیم پنتا اکسید آلاییده شده با سریم با استفاده از طیف بازتاب

نجمه کسری، فرهاد اسمعیلی قدسی*، سیده سارا فلاح‌تگر، بابک اعتمادی

گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه گیلان

چکیده - در پژوهش حاضر، محاسبه ضخامت و ثابت‌های اپتیکی فیلم‌های نازک پنتا اکسید وانادیم آلاییده شده با سریم تهیه شده به روش سل ژل روی بستر شیشه با استفاده از تک طیف بازتاب ارائه شده است. برای دستیابی به برازش مناسب طیف بازتاب از مدل کلاسیکی درود لورنتز برای تابع دی الکتریک پارامتری استفاده شده است. بهترین پارامترهای برازشی جهت شبیه سازی طیف بازتاب با روش بهینه سازی لونبرگ-مارکوارت تعیین شده است. بازتابندگی شبیه سازی شده از ثابت‌های اپتیکی و ضخامت بازیابی شده در توافق خوبی با داده های تجربی هستند.

کلید واژه- بازتابندگی، بهینه سازی، ثابت‌های اپتیکی، فیلم نازک پنتا اکسید وانادیم

Determination of the optical constants for Cerium-doped Vanadium pentoxide thin film from reflectance spectra

N. Kasra, F. E. Ghodsi*, S. S. Falahatgar, B. Etemadi

Department of Physics, Faculty of Science, /University of Guilan

Abstract- in the present work, the calculation of thickness and optical constants of cerium doped vanadium pentoxide thin films prepared by sol-gel method on glass substrates are presented using single reflection spectra. In order to obtain a suitable fitting for reflection spectra, the classical Drude-Lorentz model has been used for the parametrized dielectric functions. The best fitting parameters for simulating of reflection spectra have been determined by Levenberg-Marquardt optimization method. The simulated reflectance from the retrieved optical constants and thickness are in good agreement with experimental data.

Keywords: Thin film V_2O_5 , Reflectance, optimization, dielectric function

۱- مقدمه

وانادیم پنتاکسید (V_2O_5) یک نیم رسانای نوع n است که تراز ۳d آن در حال پر شدن می باشد [۱] و متعلق به دسته ای از مواد هوشمند است که با تغییرات دما، میدان الکتریکی یا مغناطیسی و تغییرات فشار واکنش نشان می دهد. این اکسید توانایی استفاده در قالب فیلم های نازک برای طیف گسترده ای از کاربردها، شامل ابزارهای سوئیچینگ الکترونیکی و یا اپتیکی حرارتی و پوشش های ذخیره کننده انرژی را دارند [۲ و ۳]. از این رو تعیین ثابت های اپتیکی (ضریب شکست n و ضریب خاموشی k) فیلم های نازک V_2O_5 برای طراحی ابزارهای اپتوالکترونیک و اپتیکی جهت استفاده در ساختن پوشش های اپتیکی و ابزارهایی مانند پوشش های چند لایه و فیلترها ضروری هستند. کمیت های تجربی اندازه گیری شده شامل تراگسیلندگی و یا بازتابندگی اپتیکی به عنوان تابعی از طول موج برای تعیین پارامترهای اپتیکی لایه های نازک مورد استفاده قرار می گیرند. برای تعیین پارامترهای اپتیکی، مدل های فیزیکی مختلفی مانند کوشی، فروهی - بلومر و تاوک - لورنتز برای محاسبه ضریب شکست n و ضریب خاموشی k بوسیله محققان ارائه شده است. برای هر لایه نازک با توجه به فیزیک آن باید مدل اپتیکی مناسب انتخاب و در تخمین توابع دی الکتریک حقیقی و موهومی مورد استفاده قرار گیرد. در این کار، شروع محاسبات به حدس اولیه برای پارامترهای تابع دی الکتریک و ضخامت نیازمند است که با توجه به خصوصیات فیزیکی فیلم نازک و اطلاعات موجود در سایر پژوهش هایی که در این زمینه از مقالات مختلف کسب شده است برای هر پارامتر به صورت بازه ای به عنوان ورودی الگوریتم تعریف می شود. فیلم های نازک V_2O_5 آلاینده شده با سریم روی بستر شیشه در آزمایشگاه سل ژل دانشکده علوم پایه دانشگاه گیلان تحت شرایط یکسان تهیه شده اند. اندازه گیری فیلم های نازک در چهار نمونه اکسید وانادیم به صورت غیر آلاینده، و آلاینده شده با نسبت مولی ۰/۵٪، ۱٪ و ۱/۵٪ سریم انجام شده است. شبیه سازی طیف های تجربی با استفاده از تک طیف بازتاب فیلم های نازک و با استفاده از مدل فیزیکی درود - لورنتز در فرآیند بهینه سازی لونبرگ - مارکوارت انجام شده است. ثابت های اپتیکی از جمله ضریب شکست n،

ضریب خاموشی k، ضخامت لایه ها به طور همزمان در ناحیه طول موج ۱۱۰۰nm-۴۰۰nm تعیین شده است.

۲- مدل سازی و روش انجام محاسبات

یک روش معمول برای توصیف ثابت های اپتیکی فیلم های نازک استفاده از روابط پاشندگی کلاسیکی بر مبنای تابع دی الکتریک است. یکی از قدیمی ترین و پر کاربردترین رابطه پاشندگی، رابطه تابع دی الکتریک درود - لورنتز است که بر اساس تعامل بین نور و ماده است. این رابطه در معادله (۱) نشان داده شده است.

$$\varepsilon = \varepsilon_{\infty} + \sum_{j=1}^n \frac{f_j E_{0j}^2}{E_{0j}^2 - E^2 + i\Gamma_j E} + \frac{E_p^2}{E^2 + iE_{\tau} E} \quad (1)$$

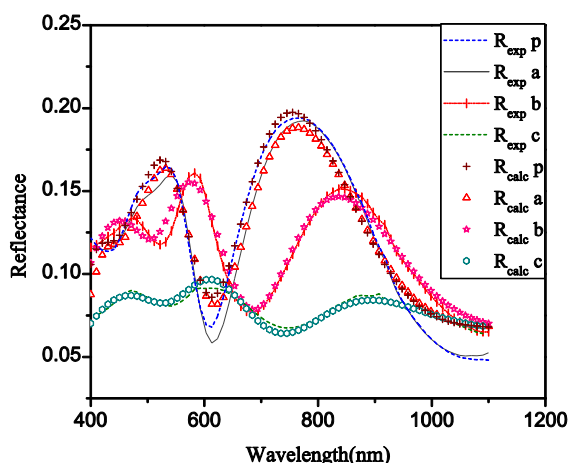
پارامترهای Γ_j ، E_{0j} ، f_j ، ε_{∞} به ترتیب ثابت تابع دی الکتریک در فرکانس های بالا، دامنه نوسانگر، قدرت و پهنای باند نوسانگراست که به عنوان عامل میرایی شناخته شده است. علت اثر میرایی به دلیل فرآیند جذب که شامل گذار بین دو حالت است. جمله سوم مربوط به مدل درود است E_p پارامتر چگالی حامل مربوط به انرژی پلاسما و E_{τ} انرژی برخورد است [۴]. تابع دی الکتریک مختلط به صورت $\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$ که واکنش ماده با امواج الکترومغناطیسی را به صورت تابعی از انرژی فوتون E یا طول موج λ توصیف می کند شامل دو بخش حقیقی ε_1 و موهومی ε_2 است. قسمتهای حقیقی و موهومی ضریب شکست مختلط یعنی $n(\lambda)$ و $k(\lambda)$ با رابطه (۲) به تابع دی الکتریک مرتبط می شوند [۵].

$$n(\lambda) = \left(\frac{\varepsilon_1 + (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2}}{2} \right)^{1/2} \quad (2)$$

$$k(\lambda) = \left(\frac{-\varepsilon_1 + (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2}}{2} \right)^{1/2}$$

طیف بازتاب (R) در فرود نرمال برای نمونه ها بر طبق [۶] به صورت تابعی از ضخامت فیلم d، ضریب شکست بستر S، طول موج نور فرودی (λ) ، ضریب شکست $n(\lambda)$ و ضریب خاموشی $k(\lambda)$ است.

شبیه سازی داده های بازتاب اندازه گیری شده با استفاده از کمینه سازی تابع هدف، که بصورت مربع تفاضل بین طیف



شکل (۱): نتایج شبیه‌سازی طیف بازتاب برای فیلم‌های نازک اکسید وانادیم آلاییده شده با سریم در غلظت ۰/۵٪ (a)، ۱٪ (b)، ۱/۵٪ (c) و غیر آلاییده (p).

بهترین پارامترهای برازشی بدست آمده از فرآیند بهینه سازی و برازش داده‌های تجربی در جدول (۱) نشان داده شده است.

جدول (۱) پارامترهای برازش تابع دی‌الکتریک مدل DL

پارامتر	pure	%0.5 Ce	%1 Ce	%1.5 Ce
ϵ_{∞}	۴/۵	۴/۳	۳/۶	۲/۷
E_p	۱/۶	۱/۵	۱/۵	۱/۲
E_{τ}	۰/۴۲	۰/۲۰	۰/۰۵	۰/۰۱
f	۰/۳۱	۰/۲۳	۰/۶۷	۰/۶۲
E_0	۲/۶	۲/۶	۲/۹	۲/۹
Γ	۰/۶	۰/۶	۱/۱	۱/۵
$d(\text{nm})$	۲۸۵	۳۰۲	۳۴۶	۴۲۵

همانطور که از جدول (۱) مشاهده می‌شود افزایش بیشتر Ce با تغییر در ساختار کریستالی و فاصله بین اتمی در شبکه فیلم نازک اکسید وانادیم باعث افزایش در مقدار Γ ، f ، E_0 ، d و کاهش در سایر پارامترها گردیده است. بر طبق [۷] پارامتر E_0 با مقادیر حدود ۲/۹-۳/۱ eV گذار اپتیکی از نوار ظرفیت به حالت جایگزیده نوار رسانش را نشان می‌دهد که در توافق با داده های جدول ۱ در کار حاضر می‌توان نتیجه گرفت انرژی گذار اپتیکی (گاف انرژی) با افزایش غلظت سریم افزایش یافته است. نتایج محاسبه ثابت‌های اپتیکی شامل ضریب شکست و خاموشی با استفاده از پارامترهای تابع دی

بازتاب اندازه‌گیری شده و مقدار محاسبه شده است بصورت رابطه (۳) تعریف میشود.

$$O(\epsilon_{\infty}, f, \Gamma, E_0, E_p, E_{\tau}, d) = \sum (R_{meas} - R_{calc})^2 \quad (3)$$

در رابطه فوق R_{meas} و R_{calc} به ترتیب طیف بازتاب اندازه‌گیری شده و تئوری می‌باشد. با استفاده از پارامترهای برازشی بدست آمده از کمینه سازی تابع هدف، منحنی پاشندگی ضرایب شکست و خاموشی تخمین زده می‌شود.

۲-۱- بحث و نتایج

طیف بازتاب اندازه‌گیری شده و شبیه سازی شده با پارامترهای برازشی برای فیلم‌های نازک اکسید وانادیم آلاییده شده با سریم در غلظتهای مختلف ۰/۵٪، ۱٪ و ۱/۵٪ که به ترتیب a, b, c و برای نمونه غیر آلاییده p نامگذاری شده‌اند، در شکل (۱) در محدوده طول موج ۴۰۰nm-۱۱۰۰nm (نواحی مرئی و نزدیک فروسرخ) با استفاده از مدل درود-لورنتز برای سیستم هوا، فیلم، بستر، هوا نشان داده شده است.

مقایسه نتایج نشان داد که نمونه حاوی ۰/۵٪ Ce (نمونه a) بازتاب بیشتری را در مقایسه با نمونه های حاوی ۱٪ و ۱/۵٪ سریم (نمونه های b و c) به نمایش می‌گذارد. همانطور که در شکل (۱) دیده شده است بازتاب فیلم‌های نازک با افزایش غلظت مولی Ce به وانادیم کاهش می‌یابد. دلیل این کاهش را به عواملی مختلفی مانند افزایش زبری، افزایش ضخامت و افزایش غلظت ماده آلاینده مرتبط است. بطوریکه نتایج بررسی زبری سطح با روش AFM، افزایش پارامتر زبری با افزایش غلظت آلاینده سریم را تأیید کرده است. در نتیجه پراکندگی نور فرودی در فیلم‌های نازک افزایش یافته است. تغییر ضخامت فیلم نازک با افزایش درصد Ce نیز عاملی در تغییر بازتابندگی فیلم‌های نازک است که ناشی از تغییر ویسکوزیته سل است. تغییر ساختار کریستالی و ترکیب شیمیایی فیلم‌های نازک ناشی از نفوذ یون‌های سریم به داخل شبکه کریستالی V_2O_5 عامل دیگری است که سبب تغییر در طیف بازتاب شده است. نتایج آنالیز ساختاری XRD تمایل به آمورف شدن با افزایش غلظت آلاینده را تأیید کرده است.

یافته است. به عبارتی جذب اپتیکی نیز در این ناحیه کاهش یافته است. و نیز قله‌های ظاهر شده در ضریب خاموشی با پارامترهای درود - لورنتز بدست آمده از الگوریتم بهینه سازی در توافق است.

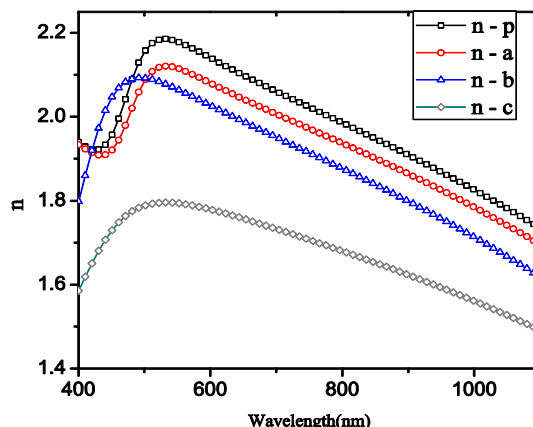
۳- نتیجه‌گیری

نتایج بهینه سازی الگوریتم لونبرگ - مارکوارت با مدل فیزیکی درود - لورنتز جهت تعیین ثابت های اپتیکی فیلم های نازک و انادیم آلاینده شده با سریم به روش سل ژل با استفاده از تک طیف بازتاب نشان می‌دهد، افزایش مقدار آلاینش، بازتابندگی و ضریب شکست را کاهش می‌دهد و همچنین باعث افزایش ضخامت لایه نازک گردیده است.

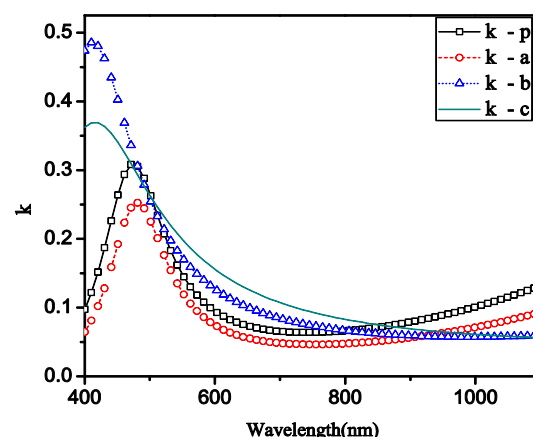
مراجع

- [1] Bondarenka V, Kaciulis S, Martunas Z, Reza A, Babonas G J, Pa.i.kevicius A XPS and optical properties of sol-gel processed vanadium pentoxide films. *Lithuanian Journal of Physics* 48 (2008). 341.348
- [2] Paone A, Joly M, Sanjines R, Romanyuk A, J.-L. Scartezzini, Schüler A, "Thermochromic films of VO₂: for "smart" solar energy applications, *Proceedings of SPIE* 20097410-74100F (2009) 29-34
- [3] Elizabeth E. Chain, Optical properties of vanadium dioxide and vanadium pentoxide thin films, *Applied* 30, (1991) 2782-2787.
- [4] Kadi, M, Assia Smaali, Ratiba, Analysis of optical and related properties of tin oxide thin films determined by Drude-Lorentz model *Surface & Coatings Technology* 211 (2012) 45-49.
- [5] Fujiwara H, Spectroscopic Ellipsometry Principles and Applications (2007)
- [6] Gungora T, Saka B, Calculation of the optical constants of a thin layer upon a transparent substrate from the reflection spectrum using a genetic algorithm, *Thin Solid Films* 467 (2004) 319- 325
- [7] Atuchin V V, Kochubey V A, Pokrovsky L D, Kruchinin V N , Ramana C V, Effects of Process Parameters on the Optical Constants of Highly Textured V₂O₅ Thin Films, *Optics and Spectroscopy*, 117 (2014) 423-427.

الکتریک بدست آمده از فر آیند کمینه سازی فیلم‌های نازک در غلظتهای مختلف ۰/۵٪ (نمونه a)، ۱٪ (نمونه b) و ۱/۵٪ (نمونه c) از سریم به ترتیب در شکل‌های (۲) و (۳) نشان داده شده است.



شکل (۲): ضریب شکست فیلم‌های نازک و انادیم با غلظت‌های ۰/۵٪ (a)، ۱٪ (b)، ۱/۵٪ (c) از Ce و نمونه خالص (p).



شکل ۳: ضریب خاموشی ضریب شکست فیلم‌های نازک و انادیم با غلظت‌های ۰/۵٪ (a)، ۱٪ (b)، ۱/۵٪ (c) از Ce و نمونه خالص (p).

همانگونه که از شکل (۲) مشاهده می‌شود ضریب شکست نمونه‌ها از ۵۰۰ تا ۱۱۰۰ رفتاری مشابه دارند، و با افزایش طول موج در حال کاهش هستند. با افزایش غلظت Ce ضریب شکست در مجموع کاهش یافته است که با نتایج مربوط به تغییرات بازتابندگی در شکل (۱) در توافق است که با افزایش زبری میزان پراکندگی افزایش و در نتیجه مقدار طیف بازتاب کم شده است. از شکل (۳) مشاهده می‌شود، $k(\lambda)$ برای دو نمونه p و a در محدوده طول موج ۴۰۰ تا ۵۰۰ در حال افزایش است. همچنین تمام نمونه‌ها در ناحیه ۵۰۰ تا اطراف ۸۰۰ در حال کاهش هستند. در مجموع $k(\lambda)$ با افزایش غلظت Ce کاهش