

23rd Iranian Conference on Optics and Photonics and 9th Conference on Photonics Engineering and Technology Tarbiat Modares University, Tehran, Iran January 31- February 2, 2017

طراحی و ساخت سه لایه WO3/Cu/WO3 به عنوان الکترود شفاف وسایل اپتوالکترونیکی و بررسی تأثیر دمای بازپخت روی ویژگیهای الکتریکی و اپتیکی آن

مدينه نژادزنگنه'، سيد محمدباقر قرشي'، احسان حسيني'، حسين زابليان

^۱دانشگاه کاشان، دانشکده فیزیک، گروه لیزر و فوتونیک

^۲دانشگاه اصفهان، گروه فیزیک

چکیده – در این کار ابتدا سه لایهای (WCW)(WC3(WCW) طراحی و ضخامتهای بهینه لایهها برای رسیدن به مقاومت سطحی پایین و شفافیت اپتیکی بالا در ناحیه مرئی محاسبه شد که ضخامتهای بهینه به صورت WO3(46nm)/glass/WO3(42nm)/Cu دست آمد. سپس سه لایهایهای WCW با ضخامتهای بهینه محاسبه شده روی زیر لایههای شیشهای با روش تبخیر حرارتی انباشت شدند. بعد از لایهنشانی، نمونهها در هوا در دماهای ۸۰، ۱۵۰ و ۲۲۰ درجه سانتیگراد بازپخت شدند و تأثیر بازپخت در دماهای مختلف بر روی مقاومت سطحی و عبور اپتیکی در ناحیه مرئی بررسی شد. در نهایت سه لایهای WCW با مقاومت سطحی (□/Ω) کا و تراگسیل در ناحیه مرئی ۷۷٪ و فاکتور شایستگی (□/Ω) ۱/۶ برای بازپخت ۱۵۰ درجه سانتیگراد بادست آمد.

كليد واژه- WO3/Cu/WO3، مقاومت سطحي، تراگسيل اپتيكي، بازپخت

Design and fabrication of tri-layer WO3/Cu/WO3 as transparent electrode in optoelectronic devices and investigating the influence of annealing on its electrical and optical properties

M. Nejad Zangene¹, S.M.B Ghorashi¹, E. Hoseini¹, H. Zabolian²

¹ Department of Photonics, Faculty of Physics, University of Kashan, Kashan, Iran

² Department of Physics, University of Isfahan, Isfahan, Iran

Abstract- In this paper a WO3/Cu/WO3 (WCW) nano-multilayer structure is designed theoretically and optimum structure are calculated as air/WO3(42nm)/Cu(12nm)/WO3(46nm)/glass. Several conductive transparent WCW nano-multilayer films are deposited on a glass substrate at room temperature by thermal evaporation method. Changes in the electrical and optical properties of samples are investigated with respect to annealing in air at different temperatures. High-quality nano-multilayer films with the sheet resistance of 7 Ω /sq and the optical transmittance of 77% and the figure of merit of 1.6 m Ω^{-1} at 150 °C annealing temperature are obtained.

Keywords: WO3/Cu/WO3, Sheet resistance, Optical transmittance, Annealing

۱– مقدمه

در سالهای اخیر طراحی و ساخت پوششهای رسانای شفاف تکلایه ی و چندلایه ای بسیار مورد توجه محققان قرار گرفته است. این ساختارها همزمان دارای رسانندگی الکتریکی بالا و شفافیت بالای ایتیکی در ناحیه مرئی هستند. از ویژگیهای الکتریکی و اپتیکی این پوششها به طور وسيعى در الكترودهاى شفاف قطعات اپتوالكترونيك، آینههای بازتاب دهنده گرما، دیودهای نورگسیل و سلولهای فتوولتاييك استفاده مى شود [1]. متداول ترين الكترود شفاف مورد استفاده در این ادوات طی سالیان گذشته، اکسید ایندیوم آلاییده شده با قلع (ITO) است که خواص منحصر به فرد الكتريكي و اپتيكي دارا ميباشد. اما به دليل معايبي مانند گران بودن، پرهزینه بودن فرآیند ساخت و خاصیت شكنندگي آن، وجود يک ماده جايگزين با خواص اپتيكي و عملکرد الکتریکی همانند ITO، لازم و ضروری است[۲]. از مهمترین ساختارهای جایگزین ITO ، سیستمهای چند لایهای دیالکتریک/فلز/دی الکتریک (DMD) هستند. در این ساختارها با انتخاب مناسب مواد دیالکتریک و فلزی و همچنین کنترل ضخامتهای هر کدام، میتوان رسانش الكتريكي، ميزان عبور و بازتاب براي محدودهي طول موجى موردنظر را تنظیم نمود [۵،۷،۱۰،۱].

۲- مبانی نظری و شبیه سازی

به منظور طراحی سیستم سه لایهای DMD از نظریه ماتریس انتقال لایههای نازک استفاده می شود[۳]. بر طبق این نظریه ماتریس مشخصه سیستم چند لایهای به صورت زیر فرمول بندی می شود:

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \left\{ \prod_{r=1}^{k} \begin{bmatrix} \cos \delta_r & \frac{i \cdot \sin \delta_r}{\eta_r} \\ i \cdot \eta_r \sin \delta_r & \cos \delta_r \end{bmatrix} \right\} \begin{bmatrix} 1 \\ \eta_m \end{bmatrix}$$

که در آن k تعداد لایهها، η_m و η_0 هدایت ظاهری نوری مختلط مختلط زیر لایه و هوا، η_r هدایت ظاهری نوری مختلط هرلایه، δ_r فاز ضخامت هر لایه هستند که به صورت زیر معرفی می شوند :

$$\delta_r = \frac{2\pi}{\lambda} \eta_r . d \tag{(Y)}$$

$$\eta_r = \begin{cases} N_r \cos\theta_r = (n_r - ik_r)\cos\theta_r & :\mathbf{S} \\ \frac{Nr}{\cos\theta_r} = \frac{n_r - ik_r}{\cos\theta_r} & :\mathbf{P} \\ \end{array}$$
قطبش (٣)

ضریب عبور، بازتاب و جذب بصورت زیر محاسبه می شود:

$$T = \frac{4\eta_0.\operatorname{Re}(\eta_m)}{(\eta_0 B + C)(\eta_0 B + C)^*}$$
(*)

(
$$f$$
) $A = \frac{4\eta_0 \cdot \text{Re}(BC^* - \eta_m)}{(\eta_0 B + C)(\eta_0 B + C)^*}$

 $R = \left(\frac{\eta_0 B - C}{\eta_0 B + C}\right) \left(\frac{\eta_0 B - C}{\eta_0 B + C}\right)^*$

بنابراین با محاسبه ماتریس مشخصه هر لایه و ضرب آنها مطابق رابطه ۱ و محاسبه B و C، طبق روابط ۴ و ۵ ضریب عبور و بازتاب چند لایهای را در بازههای طول موجی دلخواه میتوان محاسبه نمود. از طرفی، بطور همزمان مقاومت سطحی سیستم چندلایهای برای ارزیابی عملکرد الکترودهای رسانای شفاف و جهت کاربرد در قطعات اپتوالکترونیک، فاکتور مهمی است. مقاومت سطحی این پوششها، از معادله زیر قابل محاسبه است [۴]:

$$R = (1 + 2R_{sh}/Z_0)^{-2}$$
 (Y)

که در آن R بازتاب در ناحیه فروسرخ، R_{sh} مقاومت سطحی و $Z_0=\Omega$ امپدانس فضای آزاد است. این رابطه نشان میدهد که بازتاب در ناحیه فروسرخ به تراکم الکترون در این لایهها بستگی دارد. بازتاب در طول موج ۱۷۰۰ nm میتواند بهعنوان معیاری برای بازتاب در ناحیه فروسرخ بهکار رود[۵]. ضریب شایستگی (Frc) شاخص مهمی است که رابطه بین خواص الکتریکی و اپتیکی پوششهای رسانای شفاف را نشان میدهد. این کمیت توسط هاک بهصورت زیر تعریف شده است [۶]:

$$F_{TC} = \frac{T_{lum}^{10}}{R_{sh}} \tag{A}$$

Tlum عبور درخشش متوسط در ناحیه مرئے است که بهصورت زیر تعریف می شود:

$$T_{lum} = \frac{\int_{380}^{780} T(\lambda) f(\lambda) d\lambda}{\int f(\lambda) d\lambda}$$
(9)

ازدهی $f(\lambda)$ طیف تراگسیل ساختار چند لایهای و $f(\lambda)$ بازدهی $r(\lambda)$ درخشش چشم انسان است $[\gamma]$. بنابراین میتوان با داشتن ثابتهای اپتیکی لایهها و محاسبه ضرایب عبور و بازتاب،



۳- تجربی

سیستم سهلایهای با ضخامتهای بهینه محاسبه شده با دستگاه لایهنشانی تبخیر حرارتی در خلاً روی بسترههای شیشهای لایهنشانی شد. بسترههای شیشهای در آب و صابون، استون و اتانول بهصورت پیدرپی و در هر کدام از این مواد بهمدت ده دقیقه در دستگاه آلتراسونیک تمیز و در نهایت با آب مقطر شستشو و با گاز نیتروژن بطور کامل خشک شدند. برای اندازه گیری ضخامت لایهها از یک دستگاه ضخامتسنج بلور کوارتز استفاده شده است که در هر لحظه می تواند ضخامت لایه و آهنگ انباشت را در حین لایهنشانی بر روی صفحه نمایشگر نشان دهد. پودر اکسید تنگستن و فلز مس(با خلوص ۹۹/۹۹ درصد) در بوتههای تنگستنی قرار داده شدند و پس از تخلیه چنبره لایهنشانی تا فشار ^۴-۱۰×۲ میلی بار و با اعمال جریان به بوتهها، لایه-نشانی با ۱nm/s/۰صورت گرفت. پس از لایهنشانی، نمونهها در دماهای متفاوت ۸۰، ۱۵۰ و ۲۲۰ درجه سانتیگراد در آون بازپخت شدند. مقاومت سطحی سیستم چند لایه با دستگاه گمانه چهارنقطه، طیف تراگسیل لایهها با یک اسپکتروفتومتر دوپرتویی اندازهگیری شد.

۴- نتایج و بحث

طیف تراگسیل نمونهی بدون بازپخت و بازپخت شده در دماهای مختلف در شکل ۳ آورده شده است. همانطور که مشخص است با بازپخت شفافیت در ناحیه مرئی افزایش یافته است و با افزایش دمای بازپخت تا ۱۵۰ درجه سانتیگراد میزان عبور بیشتر هم میشود که به دلیل بهبود بلورینگی و کاهش عیوب شبکه بلوری در اثر عملیات حرارتی است. سپس با افزایش بیشتر دمای بازپخت تا ۲۲۰ درجه سانتیگراد تراگسیل کاهش مییابد . کاهش تراگسیل ناشی از ضخامت بهینه هر لایه برای داشتن مقاومت سطحی پایین و شفافیت اپتیکی بالا بطور همزمان را به دست آورد.

در این مقاله، از اکسید تنگستن(WO3) به عنوان لایه دی-الکتریک بهدلیل ضریب شکست بالاو شفافیت خوب در ناحیه مرئی و در بین فلزات مختلف، مس بهدلیل بالا بودن رسانندگی الکتریکی و همچنین ارزان بودن بهعنوان لایه فلزی استفاده شده است. در این اینجا محاسبات در محیط برنامهنویسی Mathcad15 انجام شده است. سیستم چندلایه-ای به صورت:

Air(n0,k0)/D(n1,k1,d1)/M(n2,k2,d2)/D(n3,k3,d3 =f.d1)/glass(n4,k4)

در نظر گرفته شده است. در محاسبات باید از توابع ثابتهای اپتیکی بر حسب طول موج استفاده شود. برای ثابتهای اپتیکی هر کدام از لایهها از دادههای تجربی موجود[۸،۹] استفاده و با استفاده از نرمافزار OriginPro8 توابعی با بیشترین همبستگی برازش شدهاند. دراینجا ضخامت لایه سوم را ضریبی از لایه اول در نظر گرفته می-شود($f_{-1} = c_{-1}$). ابتدا ضخامت لایه فلزی را ثابت در نظر گرفته و تغییرات فاکتور شایستگی را به عنوان تابعی از ضخامت لایه اول و ضریب f محاسبه میشود. شکل ۱ نمودار تغییرات ضریب شایستگی بر حسب d1 و f را نشان میدهد.



در مرحله بعد با در نظر گرفتن f=1/1 ضخامت مناسب برای لایه فلزی محاسبه می شود. در شکل ۲ ضریب شایستگی به عنوان تابعی از d_1 و d_2 و با در نظر گرفتن f=1/1 رسم شده است. از شکل ۱ و ۲ نتیجه می شود که ضخامتهای بهینه به صورت زیر می باشد:

 $\begin{array}{l} Air/WO_{3}(d_{1} = 42nm)/Cu(d_{2} = 12nm)/WO_{3}(d_{3} = 1.1 \times \\ 42nm = 46.2nm)/glass \end{array}$

پخش اتمهای فلز (در اینجا مس) به درون لایه دیالکتریک (در اینجا اکسید تنگستن) که پراکندگی بیشتر نور فرودی و کاهش تراگسیل را به همراه دارد[۱۰].



شکل۳: طیف تراگسیل ساختار سهلایهای WCW پس از لایهنشانی و در دماهای بازپخت مختلف

در شکل۴ مقاومت سطحی و فاکتور شایستگی نمونه بر حسب دمای بازپخت نشان داده شده است. همانطور که مشخص است با بازپخت نمونه تا ۱۵۰ درجه سانتیگراد مقاومت سطحی کاهش یافته است. کاهش مقاومت سطحی در این بازه دمایی ناشی از کاهش پراکندگی حاملهای بار از ناآراستیهای شبکهای به علت بهبود بلورینگی با بازپخت است. با افزایش دمای بازپخت تا ۲۲۰ درجه سانتیگراد، افزایش شدیدی در مقاومت سطحی مشاهده می شود.



شکل۴: تغییرات مقاومت سطحی و فاکتور شایستگی ساختار سهلایهای WCW با تغییر دمای بازپخت

به نظر میرسد که علت این افزایش، نفوذ اتمهای فلزی به لایه دیالکتریک و نفوذ اتمهای اکسیژن به داخل لایه نقره باشد که باعث اکسید شدن لایه فلزی و در نتیجه افزایش مقاومت میشود. این نتایج با گزارشهای دیگران توافق

دارد[۱۱]. در شکل۴ تغییرات فاکتور شایستگی با تغییر دما نیز رسم شده است و مشخص است که بازپخت ۱۵۰ درجه سانتیگراد بهترین دمای بازپخت برای ساختار WCW است.

نتيجهگيرى

در این پژوهش ابتدا سیستم سهلایهای WCW که همزمان دارای مقاومت سطحی پایین و شفافیت بالا در ناحیه مرئی است، طراحی شد. سپس با روش تبخیری لایه نشانی و بعد از آن در دماهای ۸۵۰،۱۵۰ و ۲۲۰ درجه سانتیگراد بازپخت شد. مشخص شد که با افزایش دمای بازپخت تا ۱۵۰ درجه سانتیگراد مقاومت سطحی کاهش و شفافیت در ناحیه مرئی افزایش مییابد. ولی بیشتر از آن مقاومت افزایش و شفافیت اپتیکی کاهش مییابد. بهترین دمای بازپخت برای سهلایهای ساخته شده در این پژوهش ۱۵۰ درجه سانتیگراد است.

مراجع

- [1] David S. Ginley, *Handbook of TransparentConductors*, Springer New York Heidelberg Dordrecht London,2010.
- [2] Aleksandrova M., Kurtev N., Videkov V., Tzanova S., Schintke S., "Material Alternative to ITO for Transparent Conductive Electrode in Flexible Display and Photovoltaic Devices", Microelectron Eng., 145, pp.112-116, 2015.
- [3] H.A. Macleod, *Thin Film Optical Filters*, Third edition Institute of Physics Publishing, 2001.
- [4] G. Leftheriotis , S. Papaefthimiou, P. Yianoulis, "Development of multilayer transparent conductive coatings", Solid State Ionics, vol. 136–137, 2000.
- [5] X. Liu, X. Cai, J. Qiao, J. Mao, N. Jiang, "The design of ZnS/Ag/ZnS transparent conductive multilayer films", Thin Solid Films. Vol.441,p.200-206, 2003.
- [6] G. Haacke, "New figure of merit for transparent conductors", Journal of Applied Physics, vol. 47, p. 4086-4089 (1978).
- [7] Hailing Li, Ying Lv, Xin Zhang, Xiaoyi Wang, Xingyuan Liu , "High-performance ITO-free electrochromic films based on bi-functional stacked WO3/Ag/WO3 structures", Solar Energy Materials & Solar Cells,vol.136, 2015.
- [8] K. M. McPeak, S. V. Jayanti, S. J. P. Kress, S. Meyer, S. Iotti, "Plasmonic films can easily be better: Rules and recipes", ACS Photonics, Vol. 2, 2015.
- [9] M.G Hutchins, O. Abu-Alkhair, M.M El-Nahass and K. Abd El-Hady,"Structural and optical characterisation of thermally evaporated tungsten trioxide (WO3) thin films", Materials Chemistry and Physics 98, pp. 401–405, 2006
- [10] M. Ghasemi Varnamkhasti, E. Shahriari,"Influence of heat treatment on characteristics of In2O3/Ag/MoO3 multilayer films as transparent anode for optoelectronic applications", Appl. Phys. B, Vol120, 2015.
- [11] C. Guillén, J. Herrero,"TCO/metal/TCO structures for energy and flexible electronics", Thin Solid Films, Vol.520 ,p.1–17, 2011.