

# Effect of annealing temperature on nano structural, morphological and optical properties of nickel oxide films prepared by thermal oxidation of nickel films deposited by electron beam evaporation

Fatemeh Hajakbari\*

Department of Physics, Karaj Branch, Islamic Azad University, Karaj, Iran

Received: 04.05.2019    Final revised: 16.06.2019    Accepted: 22.07.2019

Doi: [10.22055/JRMBS.2019.14921](https://doi.org/10.22055/JRMBS.2019.14921)

## Abstract

In this work, nickel thin films were first deposited on silicon and quartz substrates by the electron beam evaporation technique at the same deposition conditions. Then the prepared films were annealed at different temperatures of 400 - 700 °C in an electrical furnace. The effect of annealing temperature on the structural, morphological and optical properties of samples were investigated by X-ray diffraction (XRD), atomic force microscopy (AFM), scanning electron microscopy (SEM) and UV-Vis spectrophotometry. XRD results revealed the formation of crystalline nickel phases in the annealing temperature of 400 °C and by increasing the annealing temperature from 500 °C to 700 °C, the crystalline nickel oxide phases were observed. The AFM and SEM images showed that the annealing temperature effectively influenced the morphology and surface roughness of films and the grain sizes were increased by enhancing the annealing temperature. Also the optical band gap values of nickel oxide films deposited on quartz substrates were calculated from transmittance data.

**Keywords:** Thin films, Nickel, Nickel oxide, Electron beam evaporation, Thermal annealing, Nanocrystalline

# تأثیر دمای بازپخت بر روی ویژگی‌های نانو ساختاری، مورفولوژی و نوری لایه‌های اکسید نیکل تهیه شده توسط اکسیژن دهی حرارتی لایه‌های نیکل انباشتی به روش تبخیر باریکه الکترونی

فاطمه حاج اکبری\*

گروه فیزیک، واحد کرج، دانشگاه آزاداسلامی، کرج، ایران

دریافت: 1398/02/14 ویرایش نهائی: 1398/03/26 پذیرش: 1398/04/31

Doi: [10.22055/JRMBS.2019.14921](https://doi.org/10.22055/JRMBS.2019.14921)

## چکیده

در این تحقیق، ابتدا لایه‌های نازک نیکل با روش تبخیر باریکه الکترونی تحت شرایط انباشت یکسان بر روی زیرلایه‌های سیلیکان و کوارتز لایه‌نشانی شده و سپس تحت فلوی اکسیژن در دماهای متفاوت  $400-700^{\circ}\text{C}$  در کوره الکتریکی بازپخت حرارتی شدند. تأثیر دمای بازپخت بر روی ویژگی‌های ساختاری، مورفولوژیکی و نوری نمونه‌ها به ترتیب با آنالیزهای پراش اشعه ایکس (XRD)، میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) و طیف سنجی فرابنفش-مرئی بررسی شده است. نتایج آنالیز XRD نشان داد که فاز بلوری نیکل در دمای بازپخت  $400^{\circ}\text{C}$  ایجاد شده است و با افزایش دما از  $500^{\circ}\text{C}$  تا  $700^{\circ}\text{C}$  فازهای بلوری اکسید نیکل قابل مشاهده هستند. تصویرهای AFM و SEM نیز نشان می‌دهند که دمای بازپخت مورفولوژی و زمختی سطح لایه‌ها را قویاً تحت تأثیر خود قرار داده و با افزایش دمای بازپخت اندازه دانه‌ها افزایش یافته است. همچنین با استفاده از داده‌های عبوری لایه‌های اکسید نیکل انباشتی بر روی زیرلایه کوارتز مقادیر گاف انرژی لایه‌های اکسید نیکل محاسبه شده‌اند.

**کلیدواژگان:** لایه‌های نازک، نیکل، اکسید نیکل، تبخیر باریکه الکترونی، بازپخت حرارتی، نانو بلورک‌ها

## مقدمه

نور، پنجره هوشمند، باتری‌های لیتیومی و آشکارسازهای UV استفاده می‌شود [1-13]. برای تهیه لایه‌های نازک اکسید نیکل، از روش‌های شیمیایی و فیزیکی متفاوتی استفاده شده است. برخی از آنها عبارتند از: کندوپاش مگنترونی DC و RF [5-7]، اکسیژن دهی حرارتی [6]، تبخیر حرارتی [7]، تبخیر باریکه الکترونی [8-9]، رسوب‌گذاری توسط

لایه‌های نازک اکسید نیکل، از اکسیدهای فلزی هستند که دارای پایداری الکتروشیمیایی، دوام عالی، نیم‌رسانا نوع p با گاف نواری پهن در محدوده  $3/6$  تا  $4\text{eV}$  و دارای خاصیت بلوری خوب هستند. از لایه‌های نازک اکسید نیکل در سلول‌های خورشیدی، صفحه‌های الکتروکرومیک، سنسورهای گاز، دیویدهای گیسل کننده

\* نویسنده مسئول: [fatemeh.hajakbari@gmail.com](mailto:fatemeh.hajakbari@gmail.com)



سایز بلورک‌ها و ضخامت لایه‌ها افزایش یافته در حالی که گاف انرژی از 3/62 به 3/38 eV کاهش یافته است.

جیانگ و همکاران [8]، لایه‌های نازک NiO را به روش تبخیر باریکه الکترونی بر روی زیر لایه‌های کوارتز انباشت نموده و سپس نمونه‌ها را تحت فلوی اکسیژن به مدت 60 دقیقه در دماهای 500 تا 900°C در کوره حرارتی تحت عملیات بازپخت قرار داده و گزارش نمودند که در دمای بازپخت 500°C لایه‌ها آمورف بوده در حالی که بازپخت در دمای 700°C منجر به رشد اکسید نیکل مکعبی در دو راستای (111) و (200) شده است. با افزایش دمای بازپخت به 900°C فقط قله (111) مشاهده شده است.

اما در تحقیق حاضر، سعی بر آن است که ابتدا لایه‌های اکسید نیکل را با روش دو مرحله‌ای تهیه نماییم. در مرحله اول، لایه‌های نیکل را با روش تبخیر باریکه الکترونی بر روی زیر لایه‌های مختلفی انباشت نموده و در مرحله دوم، به منظور ایجاد لایه‌های اکسید نیکل، بازپخت حرارتی بر روی لایه‌های نیکل انجام خواهد شد. هدف آن است که تأثیر دمای بازپخت را بر روی ویژگی‌های ساختاری، مورفولوژی و نوری نمونه‌ها بررسی نموده و نتایج به دست آمده در این زمینه را با نتایج دیگر پژوهشگران مقایسه نماییم.

### کارهای آزمایشگاهی

در این تحقیق، ابتدا با روش تبخیر باریکه الکترونی لایه‌های نازک نیکل تحت شرایط انباشت یکسان روی زیرلایه‌های سیلیکان و کوارتز لایه نشانی شده‌اند. ابعاد زیرلایه‌ها یک در یک سانتی‌متر مربع و برای تمیز کردن آنها ابتدا زیرلایه‌ها به مدت ده دقیقه در محلول استون و سپس ده دقیقه در محلول الکل در دستگاه آلتراسونیک

لیزر پالسی (PLD) [10]، سل-ژل [11]، لایه‌نشانی بخارشیمیایی (CVD) [12] و اسپری پیرولیز [13].

با توجه به اینکه روش‌های لایه‌نشانی، شناخت عوامل مؤثر در حین لایه‌نشانی و عملیات پس از آن [15 و 14، 2-] می‌توانند در خواص فیزیکی، شیمیایی و همچنین کاربرد لایه‌های نازک نقش مهمی داشته باشند، از این رو با انتخاب پارامترهای مناسب برای روش‌های مختلف لایه‌نشانی می‌توان خواص لایه‌های نازک را بهینه ساخت.

آه و همکاران [4] لایه‌های اکسید نیکل را با روش کندوپاش مگنترونی RF بر روی زیر لایه‌های شیشه انباشت کرده و سپس تأثیر مخلوط‌های گاز کندوپاشی را بر روی خواص نمونه‌ها بررسی کردند.

نتایج تحقیق آنها نشان داد که نوع مخلوط گاز کندوپاشی بر روی جهت‌گیری ترجیحی لایه‌های انباشتی تأثیر گذار بوده و اضافه کردن گاز نیتروژن به مخلوط گاز آرگون و اکسیژن سبب افزایش شدت قله (200)، افزایش کم آهنگ انباشت و افزایش میزان عبور در ناحیه طول موج‌های مرئی از 58/4 به 71/3 درصد شده است. گاف انرژی هم از 3/5 به 3/6 eV افزایش یافته در حالی که اضافه کردن گاز نیتروژن به گاز آرگون سبب کاهش جزئی قله (111) و آهنگ انباشت شده و عبور در ناحیه طول موج‌های مرئی نیز از 69/3 به 56 درصد و گاف انرژی هم از 3/7 به 3/5 eV کاهش یافته است.

در تحقیق قبلی [6]، لایه‌های اکسید نیکل را با روش بازپخت حرارتی لایه‌های نیکل که به روش کندوپاش مگنترونی DC بر روی کوارتز انباشت شده‌اند را تهیه نموده و تأثیر دمای بازپخت را بر روی ویژگی‌های لایه‌های تهیه شده بررسی نمودیم. نتایج نشان داد که لایه‌های NiO با ساختار مکعبی در راستای بلوری (200) ایجاد شده و با افزایش دمای بازپخت میانگین

(AFM: Park Scientific Instrument Auto probe cp) جهت مطالعات اپتیکی نمونه‌ها، از آنالیز طیف سنج فرابنفش-مرئی (CARY500 scan) در بازه طول موج 200 تا 1100 نانومتر استفاده شده است.

### نتایج و بحث

برای بررسی ساختاری نمونه‌های تهیه شده در این تحقیق، از آنالیز (XRD) استفاده شده است. برای طیف پراش پرتو ایکس، یک هدف مسی با طول موجی برابر 0,15406 نانومتر ناشی از خط  $\text{CuK}\alpha_1$  در نظر گرفته شده است.

الگوی پراش پرتو ایکس لایه‌های نیکل انباشتی بر روی زیرلایه‌های سیلیکان و کوارتز با روش تبخیر باریکه الکترونی در شکل 1 آورده شده است. همان‌طور که این شکل نشان می‌دهد در زاویه 44/61 درجه در هر دو نمونه قله‌ای مشاهده می‌شود که مطابق با کارت استاندارد JCPDS شماره 0712-87 مربوط به فاز نیکل مکعبی در راستای (111) می‌باشد.

پس از بازپخت حرارتی نمونه‌ها، آنالیز پراش پرتو ایکس دوباره بر روی آنها انجام شده و الگوی پراش پرتو ایکس آنها در شکل 2 آورده شده است. شکل 2A الگوی پراش پرتو ایکس لایه‌های نیکل انباشتی بر روی زیرلایه‌های سیلیکان را پس از بازپخت حرارتی نشان می‌دهد. برای نمونه S1 که در دمای  $400^\circ\text{C}$  بازپخت حرارتی شده است قله‌ای مشاهده می‌شود که مربوط به فاز نیکل در راستای بلوری (111) بوده و بیانگر آن است که در این دما، فاز اکسید نیکل تشکیل نشده و بازپخت حرارتی فقط سبب باریک شدن و افزایش شدت قله (111) نسبت به نمونه بدون بازپخت شده است. این نشان می‌دهد که در این نمونه، خاصیت بلورینگی نیکل بهبود یافته است.

شستشو داده شده و در آخر توسط گاز آرگون خشک شده‌اند.

در حین فرآیند لایه‌نشانی فشار محفظه  $4 \times 10^{-3}$  میلی بار نگه داشته شده و دمای زیرلایه  $150^\circ\text{C}$ ، نمونه گردان فعال و لایه‌نشانی به مدت 20 دقیقه انجام شده است. ضخامت لایه‌های نیکل که با استفاده از ضخامت سنج کریستالی کوارتز اندازه‌گیری شده است حدود 100 نانومتر می‌باشد. در آخر، برای تهیه لایه‌های نازک اکسید نیکل، از روش بازپخت حرارتی لایه‌های نیکل استفاده شده است.

بازپخت حرارتی نمونه‌ها در کوره الکتریکی انجام شده است. نمونه‌ها در چهار دمای مختلف 600، 500، 400 و  $700^\circ\text{C}$  به مدت چهار ساعت تحت فلوکسیژن بازپخت حرارتی شده‌اند. مطابق جدول 1، نمونه‌های انباشتی بر روی زیرلایه‌های سیلیکان و کوارتز به ترتیب با SampleQ و SampleS نام‌گذاری شده‌اند. جهت بررسی تأثیر دمای بازپخت روی ویژگی‌های فیزیکی لایه‌های تهیه شده، آنالیزهای متفاوتی بر روی نمونه‌ها انجام شده است.

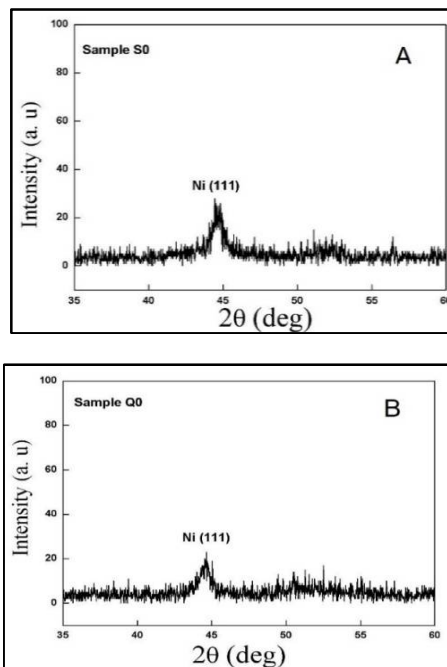
جدول 1. نام‌گذاری نمونه‌ها

| نام نمونه<br>Sample | دمای بازپخت<br>حرارتی ( $^\circ\text{C}$ ) | زمان بازپخت<br>حرارتی (min) |
|---------------------|--|-----------------------------|
| S0 و Q0             | -  | -                           |
| S1 و Q1             | 400  | 240                         |
| S2 و Q2             | 500  | 240                         |
| S3 و Q3             | 600  | 240                         |
| S4 و Q4             | 700  | 240                         |

برای بررسی ویژگی‌های ساختاری از آنالیز پراش پرتو ایکس (XRD) مدل (Philips, pw 1800) استفاده شده است. برای بررسی مورفولوژی و زمختی سطح لایه‌ها از آنالیزهای میکروسکوپ الکترونی (SEM: Hitachi S-4160) و میکروسکوپ نیروی اتمی

بالا مشاهده می‌شود که مربوط به فاز نیکل در راستای بلوری (200) است و نشان می‌دهد که در دمای بازپخت  $400^{\circ}\text{C}$  فاز اکسید نیکل تشکیل نشده و بازپخت حرارتی در این دما فقط سبب تغییر راستای بلوری نیکل از (111) به (200) شده است. مطابق شکل 2B، پس از بازپخت حرارتی لایه‌های نیکل انباشتی بر روی زیرلایه کوارتز در دمای  $500^{\circ}\text{C}$  مشاهده می‌شود که فاز بلوری اکسید نیکل مکعبی در راستای (200) رشد نموده است. با افزایش دمای بازپخت به  $600^{\circ}\text{C}$  شدت قله اکسید نیکل در راستای (200) به شدت افزایش یافته و بیانگر بهبود خاصیت بلورینگی لایه اکسید نیکل می‌باشد. همان‌طور که مشاهده می‌شود، با افزایش دمای بازپخت از 500 به 600 درجه سلسیوس پهنای قله (200) کاهش یافته که بیانگر افزایش اندازه بلورک‌ها در این نمونه می‌باشد. در واقع، با افزایش دمای بازپخت، جنبش اتمی افزایش می‌یابد و کاهش انرژی سطحی منجر به افزایش اندازه بلورک‌ها در لایه می‌شود. با افزایش دمای بازپخت به  $700^{\circ}\text{C}$  فاز بلوری اکسید نیکل مکعبی در راستای (200) مشاهده نشده و فقط قله‌ای با شدت کم مربوط به فاز اکسید نیکل در راستای (111) مشاهده می‌شود.

تغییرات بلورینگی ایجاد شده در این نمونه‌ها را این‌طور می‌توان توجیه نمود که در دماهای پایین، ذرات رسوب گذاری شده انرژی کافی برای ایجاد کردن دانه‌های بزرگتر را نداشته و نقص‌هایی که در بلور وجود دارد سبب کرنش بیشتر در لایه می‌شود. اما با افزایش دما کیفیت بلوری بهبود یافته و کرنش بلوری کاهش می‌یابد. از سوی دیگر، افزایش بیشتر دما می‌تواند به اتم‌ها انرژی زیادی داده و سبب شکل‌گیری نقص‌ها و افزایش مجدد کرنش بلوری شود.



شکل 1. الگوی پراش پرتو ایکس لایه‌های نیکل انباشتی بر روی زیرلایه‌های سیلیکان (شکل A) و کوارتز (شکل B).

همان‌طور که شکل 2A نشان می‌دهد، پس از بازپخت لایه‌های نیکل انباشتی بر روی زیرلایه سیلیکان در دماهای 500 تا  $700^{\circ}\text{C}$  فازهای بلوری اکسید نیکل مکعبی در دو راستای (111) و (200) مطابق با کارت استاندارد JCPDS شماره 78-0643 ایجاد شده است. با افزایش دمای بازپخت از 500 به 600 درجه سلسیوس شدت قله‌های فوق بیشتر شده ولی با افزایش دما به  $700^{\circ}\text{C}$  علاوه بر قله‌های مربوط به فاز اکسید نیکل، قله‌ای با شدت کم مربوط به فاز نیکل در راستای (111) نیز ایجاد شده که می‌تواند به دلیل بلوری شدن نیکل‌هایی که شاید به صورت آمورف در لایه بوده باشد. نتایج فوق نشان می‌دهند که دمای بازپخت حرارتی به شدت بر روی بلورینگی نمونه‌ها تأثیرگذار می‌باشد.

الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های انباشتی روی زیرلایه‌های کوارتز پس از بازپخت حرارتی در شکل 2B آورده شده است. برای نمونه Q1، قله‌ای با شدت

در کار قبلی [6]، که ابتدا لایه‌های نازک نیکل با روش کندوپاش مگنترونی DC روی زیرلایه‌های کوارتز لایه‌نشانی شده و سپس شبیه به این تحقیق نمونه‌ها را تحت فلوی اکسیژن در دماهای مختلف بازپخت نمودیم، نتایجی مشابه مشاهده شده است. برای نمونه‌های تهیه شده در کار قبلی که با روش لایه‌نشانی متفاوتی نسبت به این تحقیق تهیه شده‌اند نیز بهترین بلورینگی در دمای  $600^{\circ}\text{C}$  مشاهده شده است.

برای بررسی دقیق‌تر خواص ساختاری نمونه‌ها اندازه بلورک‌ها D، کرنش بلوری  $\epsilon$  و چگالی در رفتگی  $\delta$  از رابطه‌های 1 تا 3 محاسبه شده [16] و نتایج در جدول 2 آورده شده است.

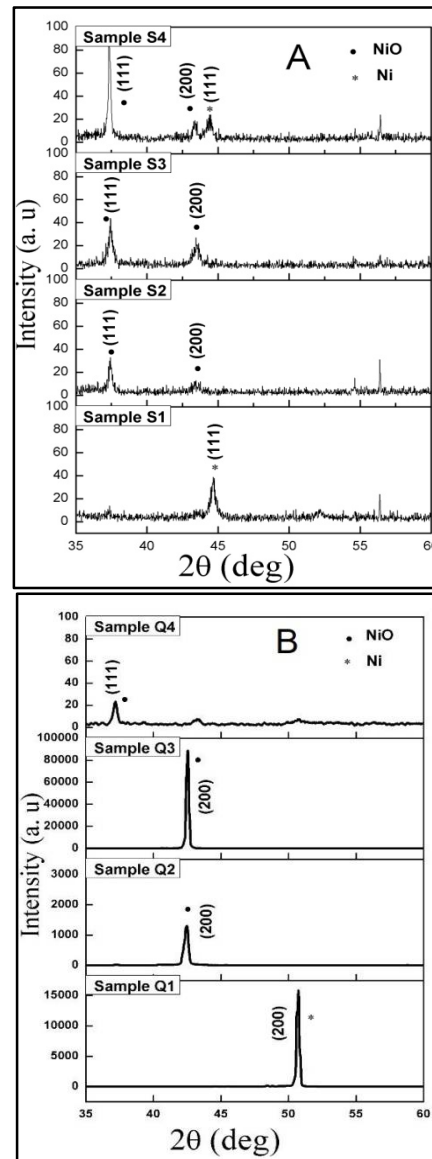
$$D = k\lambda/\beta\cos\theta \quad 1$$

$$\epsilon = \beta/4\tan\theta \quad 2$$

$$\delta = 1/D^2 \quad 3$$

در رابطه‌های بالا، D اندازه متوسط بلورک‌ها برحسب نانومتر، K ضریب تصحیح بدون بعد و برابر  $0.94\lambda$  طول موج پرتو ایکس با چشمه مس ( $0.15406$  نانومتر) و  $\beta$  پهنای قله در نصف ارتفاع بیشینه برحسب رادیان و  $\theta$  زاویه براگ می‌باشد.

مطابق نتایج جدول 2 اندازه بلورک‌ها بین 8 تا 49 نانومتر تخمین زده شده و مشخص می‌شود که نانو بلورک‌های نیکل و اکسید نیکل تشکیل شده است. از سوی دیگر، با افزایش دمای بازپخت اندازه متوسط بلورک‌ها افزایش و چگالی در رفتگی و کرنش بلوری ( $\epsilon$ ) کاهش یافته است.

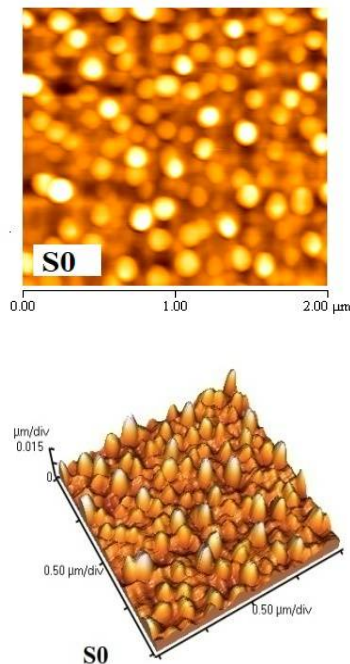


شکل 2. الگوی پراش پرتو ایکس لایه‌های انباشتی بر روی زیرلایه‌های سیلیکان (شکل A) و کوارتز (شکل B) پس از بازپخت حرارتی در دماهای متفاوت.

نتایج آنالیز پراش پرتو ایکس نمونه‌ها نشان می‌دهند که، نوع زیرلایه و دمای بازپخت ساختار و خاصیت بلوری نمونه‌ها را به شدت تحت تأثیر خود قرار داده است. همچنین، در این تحقیق دمای بهینه بازپخت که در آن دما بهترین خاصیت بلوری مشاهده شده  $600^{\circ}\text{C}$  می‌باشد.

جدول 2: مشخصه‌های ساختاری نمونه‌ها

| نام | فاز        | اندیس<br>میلر | D<br>(nm<br>) | $\epsilon$<br>$\times 10^{-3}$ | $\delta$<br>( $\times 10^{15}$ )<br>(lines/m <sup>2</sup> ) |
|-----|------------|---------------|---------------|--------------------------------|---|
| Q0  | Ni         | (111)         | 10            | 8,6                            | 10  |
| Q1  | Ni         | (200)         | 40            | 2,02                           | 0,62  |
| Q2  | NiO        | (200)         | 26            | 3,70                           | 1,47  |
| Q3  | NiO        | (200)         | 37            | 2,57                           | 0,73  |
| Q4  | NiO        | (111)         | 26            | 4,14                           | 1,47  |
| S0  | Ni         | (111)         | 8             | 11,9                           | 15,60   |
| S1  | Ni         | (111)         | 25            | 3/6                            | 1/60  |
| S2  | NiO        | (111)         | 24            | 4,4                            | 1,73  |
| S3  | NiO<br>NiO | (111)         | 27            | 4,1                            | 1,37  |
|     |            | (200)         | 20            | 4,6                            | 2,50  |
| S4  | NiO        | (111)         | 49            | 2,2                            | 0,41  |

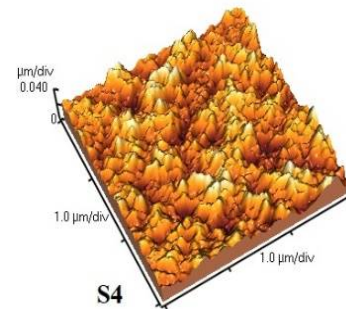
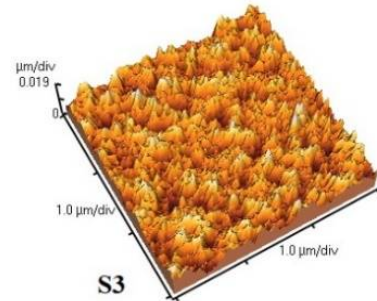
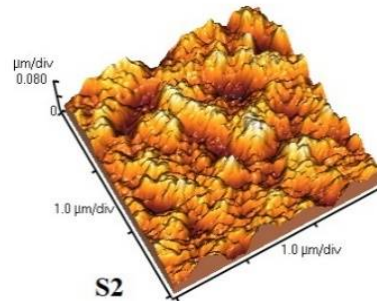
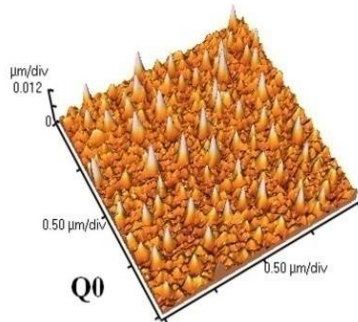
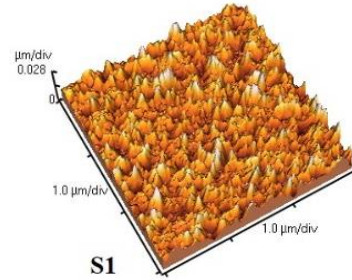
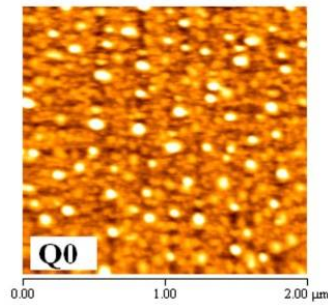


شکل 3. تصویر دو و سه بعدی AFM لایه نیکل انباشتی بر روی زیرلایه سیلیکان قبل از بازپخت حرارتی (نمونه S0).

شکل 4 نشان می‌دهد پس از بازپخت حرارتی، مورفولوژی سطح کاملاً تغییر نموده است. در شکل 5 تصویر دو بعدی AFM لایه نیکل انباشتی بر روی زیرلایه کوارتز قبل از بازپخت، نشان می‌دهد که دانه‌های کروی ریز در کنار یکدیگر قرار گرفته‌اند و تصویر سه بعدی آن نیز رشد هرمی را نشان می‌دهد.

با توجه به اینکه خواص سطح لایه‌های نازک اکسید نیکل می‌تواند ویژگی‌های الکتریکی و اپتیکی آن را تحت تأثیر خود قرار دهند و این ویژگی‌ها در کاربردهای لایه‌های اکسید نیکل در قطعات اپتوالکترونیک مهم هستند. از این رو مورفولوژی سطح لایه‌ها با آنالیزهای AFM و SEM بررسی شده است. تصویرهای AFM لایه‌های نیکل انباشتی بر روی زیرلایه‌های سیلیکان قبل و بعد از بازپخت حرارتی در شکل‌های 3 و 4 آورده شده است. شکل 3 تصویرهای دو و سه بعدی را قبل از بازپخت نشان می‌دهد.

در شکل 3، تصویر دو بعدی AFM نشان می‌دهد که دانه‌های کروی تقریباً هم‌اندازه به‌طور یکنواخت در کنار یکدیگر بر روی سطح لایه توزیع شده است. تصویرهای سه بعدی نیز رشد کپه‌ای لایه را نشان می‌دهند.



شکل 5. تصویر دو و سه بعدی AFM لایه نیکل انباشتی بر روی زیرلایه کوارتز قبل از بازپخت حرارتی (نمونه Q0).

همان‌طور که شکل 6 نشان می‌دهد، پس از بازپخت حرارتی نمونه‌های انباشتی روی زیر لایه کوارتز در دماهای متفاوت 400 تا 700°C مورفولوژی سطح تغییر نموده است. نمودار تغییرات زمختی متوسط (Average) و جذر میانگین مربعی زمختی (RMS) نمونه‌های انباشتی بر روی سیلیکان و کوارتز در شکل 7 آورده شده‌اند. نمودار فوق بیانگر آن است که زمختی سطح لایه‌ها پس از بازپخت حرارتی نسبت به قبل از بازپخت بیشتر شده است. در واقع، دمای بازپخت زمختی سطح لایه‌ها را تحت تأثیر خود قرار داده است.

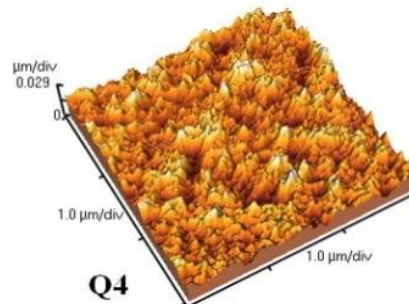
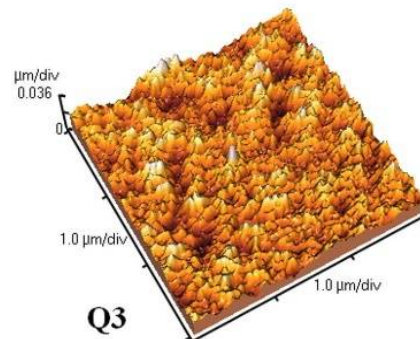
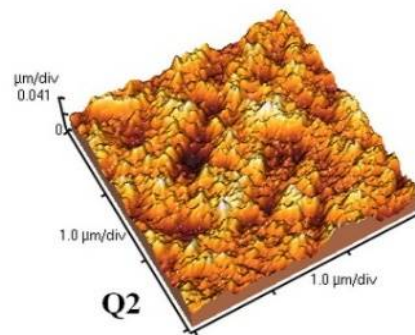
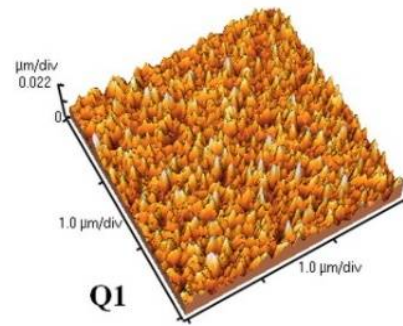
شکل 4. تصویرهای سه‌بعدی AFM لایه‌های اکسید نیکل انباشتی بر روی زیر لایه‌های سیلیکان در دماهای بازپخت متفاوت.



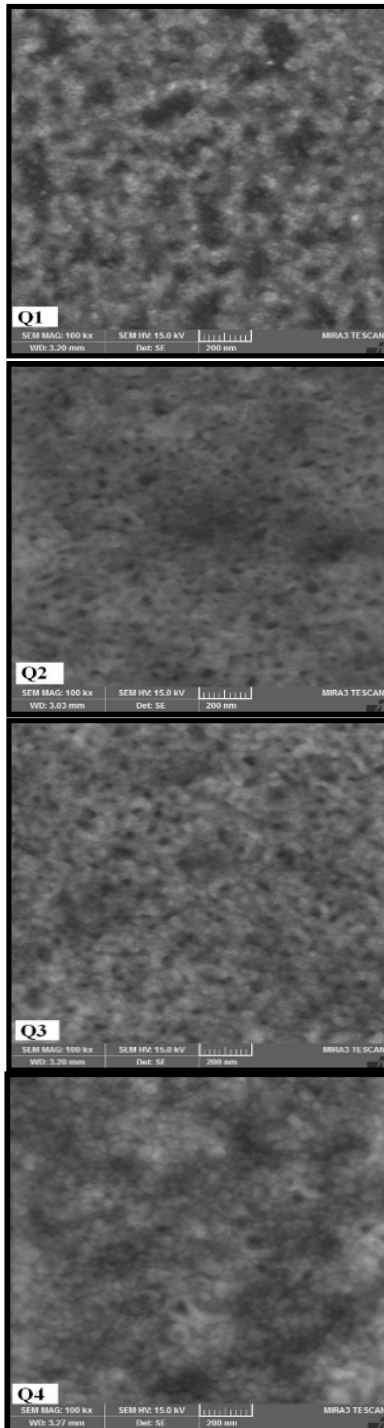
نتایج آنالیز AFM نمونه‌های انباشتی روی هر دو نوع زیرلایه (سیلیکان و کوارتز) نشان می‌دهد که دمای بازپخت مورفولوژی و زمختی سطح لایه‌های اکسید نیکل را قویاً تحت تأثیر قرار داده است. همچنین، اندازه دانه‌ها در تمام نمونه‌ها با افزایش دمای بازپخت افزایش می‌یابد. این رفتار می‌تواند ناشی از افزایش تحرک اتم‌ها و ادغام و الحاق دانه‌ها باشد که به نوبه خود نقص‌ها و حفره‌ها را در ساختار لایه کاهش داده و منجر به افزایش اندازه دانه‌ها می‌شود.

شکل 8، نمودار هیستوگرام توزیع ارتفاع سطح نمونه‌ها را پس از بازپخت حرارتی نشان می‌دهد. با استفاده از نتایج آنالیز AFM و نرم افزار Wsxm [17] این نمودار به دست آمده است. نمودار فوق یک توزیع گاوسی را نشان می‌دهد که بیانگر همگن بودن سطح لایه‌ها می‌باشد. از سوی دیگر با افزایش زمختی سطح، پهنای قله در نمودار توزیع ارتفاع افزایش می‌یابد. با توجه به شکل فوق بیشترین پهنای قله مربوط به نمونه‌های S2 و Q2 است که داری بیشترین زمختی در بین نمونه‌ها هستند.

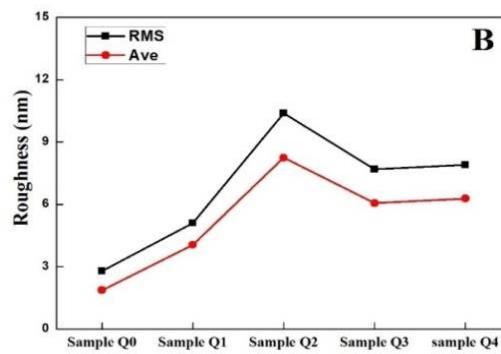
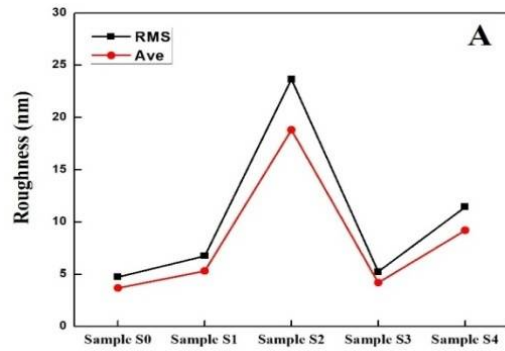
در شکل 9، تصویرهای SEM نمونه‌های انباشتی بر روی زیرلایه‌های کوارتز پس از بازپخت حرارتی در دماهای 400 تا 700 °C آورده شده است. تصویرهای فوق نشان می‌دهند که لایه‌ها پیوسته، چگال و یکنواخت هستند و با افزایش دمای بازپخت، سطح لایه‌ها به هم فشرده‌تر شده است. آنالیز SEM بر روی بخش وسیعی از سطح لایه‌ها بررسی شد و در تصویرها که در مقیاس 200 نانومتر گرفته شده نانو ترک مشهودی در لایه‌ها مشاهده نشده است.



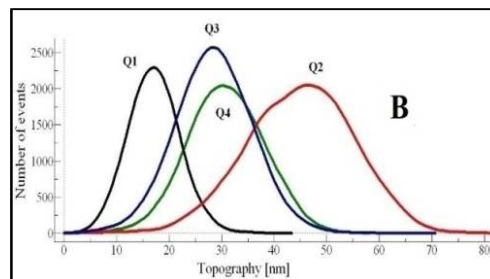
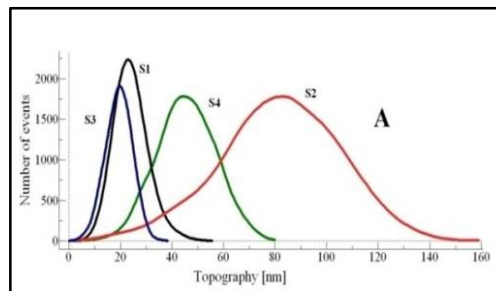
شکل 6. تصویرهای سه‌بعدی AFM لایه‌های اکسید نیکل انباشتی بر روی زیرلایه‌های کوارتز در دماهای بازپخت متفاوت.



شکل 9. تصویرهای SEM لایه‌های اکسید نیکل انباشتی بر روی زیر لایه‌های کوارتز پس از بازپخت حرارتی در دماهای متفاوت.



شکل 7. نمودار تغییرات زمختی سطح نمونه‌های انباشتی بر روی زیر لایه‌های سیلیکان (شکل A) و کوارتز (شکل B).



شکل 8. نمودار تغییرات تعداد برجستگی‌های سطح بر حسب ارتفاع برای لایه‌های اکسید نیکل انباشتی بر روی زیر لایه‌های سیلیکان (شکل A) و کوارتز (شکل B).

میزان عبور افزایش و میزان جذب نور کاهش یافته که می‌تواند به دلیل ایجاد فاز اکسید نیکل و نیز بهبود خاصیت بلورینگی لایه‌ها باشد که در نتایج پراش پرتو ایکس این نمونه‌ها نیز مشاهده شده است. اما با افزایش دمای بازپخت به  $700^{\circ}\text{C}$  نیز میزان عبور نور کاهش و جذب افزایش می‌یابد که می‌تواند به دلیل کاهش فاز اکسیدی نیکل و نیز کاهش خاصیت بلورینگی در این نمونه باشد. از سوی دیگر، با توجه به اینکه ضخامت لایه نیز می‌تواند میزان جذب و عبور نور از لایه‌ها را تحت تأثیر خود قرار دهد بنابراین می‌توان گفت که در سه نمونه Q2، Q3 و Q4 که فاز اکسید نیکل تشکیل شده افزایش عبور و کاهش جذب نور در نمونه Q3 می‌تواند علاوه بر بهبود بلورینگی لایه به کاهش ضخامت لایه در این نمونه مربوط شود. با افزایش دمای بازپخت از 600 به 700 درجه سلسیوس، همانطور که در شکل 10 مشاهده می‌شود میزان ضخامت لایه در نمونه Q4 نسبت به نمونه Q3 افزایش یافته که می‌تواند منجر به کاهش عبور و افزایش میزان جذب نور در این نمونه شود که در شکل 11 نیز مشاهده می‌شود.

برای محاسبه گاف انرژی، ابتدا ضریب جذب ( $\alpha$ ) را از رابطه 4 به دست می‌آوریم:

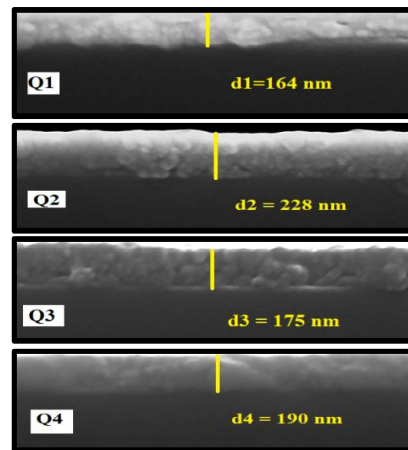
$$\alpha = 1/d \ln (1/T) \quad 4$$

در رابطه 4،  $d$  و  $T$  به ترتیب ضخامت لایه و درصد عبور نور از لایه می‌باشند. سپس از وابستگی ضریب جذب  $\alpha$  به انرژی فوتون‌ها طبق رابطه توک [16] می‌توان گاف انرژی را به دست آورد.

$$(\alpha hv)^{1/n} = A (E_g - hv) \quad 5$$

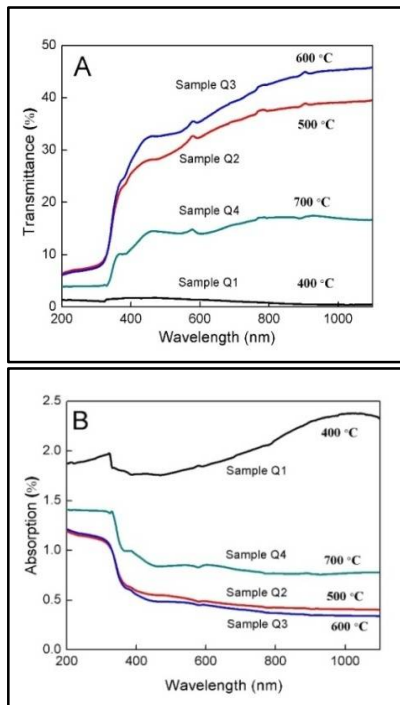
در رابطه 5،  $\alpha$  ضریب جذب،  $hv$  انرژی فوتون فرودی،  $E_g$  گاف انرژی،  $A$  ثابت عددی است که به جرم مؤثر الکترون، حفره و ضریب شکست ماده بستگی دارد.  $n$

تصویرهای سطح مقطعی SEM نیز در شکل 10 آورده شده‌اند. این شکل نشان می‌دهد که تمام لایه‌ها چسبندگی خوبی به زیرلایه داشته و همچنین ضخامت متوسط لایه‌های بازپختی در دماهای 400، 500، 600 و  $700^{\circ}\text{C}$  به ترتیب برابر 164، 228، 175 و 190 نانومتر است. نتایج آنالیز SEM نیز نشان می‌دهد که مورفولوژی سطح و ضخامت لایه‌ها به شدت تحت تأثیر دمای بازپخت قرار گرفته‌اند.

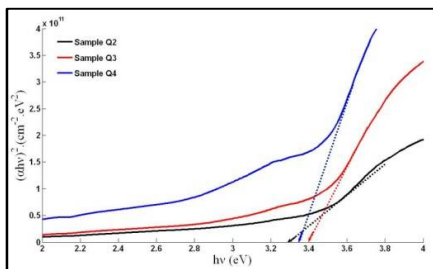


شکل 10. تصویر سطح مقطع SEM نمونه‌های انباشتی بر روی زیرلایه‌های کوارتز پس از بازپخت در دماهای متفاوت.

خواص اپتیکی لایه‌های اکسید نیکل تهیه شده در دماهای بازپخت متفاوت با استفاده از طیف سنجی فرابنفش-مرئی مطالعه شده است. همان‌طوری که در شکل 11A مشاهده می‌شود، درصد عبور نور از نمونه Q1 که در دمای  $400^{\circ}\text{C}$  بازپخت شده بسیار ناچیز و جذب آن مطابق شکل 11B از سایر نمونه‌ها بیشتر است. البته تصویر پراش پرتو ایکس (شکل 2) نیز نشان داد که در این نمونه فقط فاز بلوری نیکل در راستای (200) ایجاد شده و در این دما، لایه نیکل به اکسید نیکل تبدیل نشده است. این میزان عبور نور ناچیز می‌تواند به دلیل وجود فاز فلزی نیکل در این نمونه باشد. با افزایش دمای بازپخت نمونه‌ها تا  $600^{\circ}\text{C}$



شکل 11. طیف‌های عبوری (شکل A) و جذب (شکل B) لایه‌های اکسید نیکل در دماهای بازپخت متفاوت بر روی زیرلایه‌های کوارتز.



شکل 12. نمودار  $(\alpha hv)^2$  برحسب  $hv$  برای لایه‌های اکسید نیکل تهیه شده در دماهای بازپخت متفاوت.

نظیر این مشاهده را خلف و همکاران گزارش نموده‌اند [5]. با افزایش دمای بازپخت از 600 به 700°C مقدار گاف انرژی کاهش یافته که می‌تواند به دلیل افزایش ضخامت لایه و کاهش کرنش بلوری موجود در لایه باشد. نتایج دیگر محققین نیز این امر را تأیید می‌کند [5].

برای گاف غیر مستقیم و مجاز مساوی 2 و برای گاف مستقیم و مجاز برابر 0/5 می‌باشد.

باتوجه به اینکه لایه‌های اکسید نیکل دارای گاف انرژی مستقیم و مجاز هستند [4,8,13]، بنابراین مقدار  $n$  برابر 0/5 می‌باشد و برای محاسبه گاف انرژی لایه‌های اکسید نیکل تهیه شده در این تحقیق نمودار  $(\alpha hv)^2$  برحسب  $(hv)$  را رسم کرده و گاف انرژی را از برون‌یابی بخش خطی نمودار فوق محاسبه می‌نماییم. در شکل 12 نمودار فوق برای نمونه‌های تهیه شده در دماهای بازپخت متفاوت رسم شده است. مقادیر گاف انرژی همراه با مقادیر لبه جذب که از رابطه  $\lambda_c = 1240/E_g$ ،  $\lambda_c$  طول موج برحسب نانومتر و  $E_g$  گاف انرژی برحسب الکترون ولت) محاسبه شده‌اند در جدول 3 آورده شده است. مقادیر گاف انرژی لایه‌های اکسید نیکل تهیه شده در دماهای بازپخت متفاوت 500 تا 700°C که از نمودار شکل 12 به دست آمده در محدوده 3/29 تا 3/40eV است. این مقادیر در توافق خوبی با مقادیر گزارش شده توسط دیگر پژوهشگران است [4,13,8]. با توجه به نتایج جدول 3، مشاهده می‌شود که با افزایش دمای بازپخت از 500 به 600°C مقدار گاف انرژی افزایش یافته است. این پدیده می‌تواند ناشی از بهبود خاصیت بلوری و نیز کاهش ضخامت لایه (که در نتایج و SEM XRD مشاهده شدند) باشد.

[2] A. Mallikarjuna Reddy, A. Sivasankar Reddy, K.S. Lee, P. Sreedhara Reddy, Growth and characterization of NiO thin films prepared by dc reactive magnetron sputtering, *Solid state Sciences* **13** (2011) 314-320.

[3] X. Yan, J. Zheng, L. Zheng, G. Lin, H. Lin, G. Chen, B. Du, F. Zhang, Optimization of sputtering NiO<sub>x</sub> films for perovskite solar cell application, *Material Research Bulletin* **103** (2018) 150-157

[4] J.H. Oh, S.Y. Hwang, Y.D. Kim, J.H. Song, T.Y. Seong, Effect of different sputtering gas mixtures on the structural, electrical, and optical properties of p-type NiO thin films, *Material Science Semiconductor Process* **16** (2013) 1346-1351.

[5] M.K. Khalaf, R.H. Mutlak, A.I. Khudiar, Q.G. Hial, Influence of discharge voltage on the sensitivity of the resultant sputtered NiO thin films toward hydrogen gas, *Physica B* **514** (2017) 78-84.

[6] F. Hajakbari, M.T. Afzali, A. Hojabri, Nanocrystalline nickel oxide (NiO) thin films grown on quartz substrates: Influence of annealing temperatures, *Acta Physica Polonica A* **131** 3 (2017) 417-419.

[7] Y. Zhang, Thermal oxidation fabrication of NiO film for optoelectronic devices, *Applied Surface Science* **344** (2015) 33-37.

[8] D.Y. Jiang, J.M. Qin, X. Wang, S. Gao, Q.C. Liang, J.X. Zhao, Optical properties of NiO thin films fabricated by electron beam evaporation, *Vacuum* **86** (2012) 1083-1086.

[9] S. Pereira, A. Gonçalves, N. Correia, J.Pinto, L. Pereira, R. Martins, E. Fortunato, Electrochromic behavior of NiO thin films deposited by e-beam evaporation at room temperature, *Solar Energy Material Solar Cell* **120** (2014) 109-115.

[10] I. Fasaki, A. Giannoudakos, M. Stamataki, M. Kompitsas, E. Gy'orgy, I.N. Mihailescu, F. Roubani-kalantzopoulou, A.

جدول 3. گاف انرژی و لبه جذب نمونه‌های تهیه شده در دماهای بازپخت متفاوت.

| نام نمونه | دمای بازپخت (°C) | گاف انرژی (eV) | لبه جذب (nm) |
|-----------|------------------|----------------|--------------|
| Q2        | 500              | 3,29           | 377          |
| Q3        | 600              | 3,40           | 365          |
| Q4        | 700              | 3,35           | 370          |

### نتیجه گیری

در این تحقیق تأثیر دمای بازپخت حرارتی بر روی ویژگی‌های فیزیکی نانو بلورهای نیکل انباشتی بر روی زیرلایه‌های سیلیکان و کوارتز بررسی شده است. نتایج آنالیز XRD بیانگر آن است که ساختار لایه‌ها و بلورینگی آنها قویاً تحت تأثیر دمای بازپخت قرار گرفته و دمای بهینه که در آن بهترین خاصیت بلوری مشاهده شده 600 °C می‌باشد. اندازه متوسط بلورکها بین 8 تا 49 نانومتر می‌باشد.

نتایج آنالیزهای AFM و SEM نشان می‌دهند که دمای بازپخت مورفولوژی و زمختی سطح لایه‌های اکسید نیکل را تحت تأثیر خود قرار داده است. نتایج طیف‌های عبور و جذب لایه‌های انباشتی بر روی زیرلایه‌های کوارتز نشان می‌دهند که نمونه اکسید نیکل که در دمای 600 °C تهیه شده دارای بیشترین میزان عبور نور و کمترین میزان جذب نور در بین نمونه‌ها می‌باشد. گاف انرژی لایه‌های اکسید نیکل تهیه شده در این تحقیق بین 3/29 تا 3/40 الکترون ولت است.

### مرجع ها

[1] Sh. Hou, A.I. Gavrilyuk, J. Zhao, H. Geng, N. Li, Ch. Hua, K. Zhang, Y. Li, Controllable crystallinity of nickel oxide film with enhanced electrochromic properties, *Applied Surface Science* **451** (2018) 104-111.

- thermal oxidation temperatures on the structural and morphological properties of MoO<sub>3</sub> thin films, *Acta. Physica Polonica A* **123** (2013) 307-308.
- [15] A. Hojabri, F. Hajakbari, N. Soltanpoor, M. S. Hedayati, Annealing temperature effect on the properties of untreated and treated copper films with oxygen plasma, *Journal of Theoretical and Applied Physics* **8** (2014) 132.
- [16] S. Jalili, F. Hajakbari, A. Hojabri, Effect of silver thickness on structural, optical and morphological properties of nanocrystalline Ag/NiO thin films, *Journal of Theoretical and Applied Physics* **12** (2018) 15-22.
- [17] I. Horcas, J.M. Fernandez, J.G. Roderiguez, J. Colchero, J.G. Herrero, A.M. Baro, WSXM: A software for scanning probe microscopy and a tool for nanotechnology, *Review Scientific Instrument* **78** (2007) 013705.
- Lagoyannis, S. Harissopulos, Nickel oxide thin films synthesized by reactive pulsed laser deposition: characterization and application to hydrogen sensing, *Applied Physics A* **91** (2008) 487-492.
- [11] F. Miao, Q. Li, B. Tao, P. Chu, Fabrication of highly ordered porous nickel oxide anode materials and their electrochemical characteristics in lithium storage, *Journal of Alloys and Compound*, **594** (2014) 65- 69.
- [12] T.M. Roffi, S. Nozaki, K. Uchida, Growth mechanism of single-crystalline NiO thin films grown by metal organic chemical vapor deposition, *Journal of Crystal Growth* **451** (2016) 57-64.
- [13] R. Sharma, A.D. Acharya, S.B. Shrivastava, T. Shripathi, V. Ganesan, Preparation and characterization of transparent NiO thin films deposited by spray pyrolysis technique, *Optik* **125** (2014) 6751-6756.
- [14] A. Hojabri, F. Hajakbari, A. Emami Meibodi, M. Moghri Moazen, Influence of