

بررسی اثر ضخامت زیرلایه بر جذب تک لایه‌های TMDC در ناحیه طول موج مرئی

نرگس انصاری^{1*}، فریناز قربانی²، انسیه محبی³

1. استادیار، گروه فیزیک، دانشگاه الزهرا

2. کارشناس، فیزیک، دانشگاه الزهرا

3. کارشناس ارشد، فیزیک، دانشگاه الزهرا

تاریخ دریافت: 1397/03/31 تاریخ پذیرش: 1397/08/15

Investigation of the Effect of Substrate Thickness on Absorption of TMDC Monolayers in the Visible Wavelength

N. Ansari^{*1}, F. Ghorbani², E. Mohebbi³

1. Assistant Professor, Department of Physics, Alzahra University, Tehran, Iran.

2. Bs.C., Physics, Alzahra University, Tehran, Iran

3. Ms.C., Physics, Alzahra University, Tehran, Iran

Received: 2018/06/21 Accepted: 2018/11/06

Abstract

Two-dimensional transition-metal dichalcogenides (TMDC) layers with direct bandgaps have made a new horizon for application in photonics and electro-optics. The presence of bandgap causes a significant absorption useful in photovoltaic devices. When these layers are located on a substrate that leads to a frequent optical reflection thus affect the absorption. Typically, SiO₂ or Si or their combination as a substrate is used for these monolayers. In this paper, we used a transfer matrix method to study the absorption spectra of TMDC monolayers including MoSe₂, WSe₂, MoS₂ and WS₂ with the presence of SiO₂/ Si substrate with different thicknesses of SiO₂ layer. We found that using the SiO₂ layer with a thickness of 90 nm in SiO₂/ Si substrate does not change the general behavior of absorption and increases the absorption in some regions of the wavelength range.

Keywords

Two Dimensional TMDC, Absorption, Substrate, Transfer Matrix Method, Lorentz Permittivity.

چکیده

لایه‌های دوبعدی دی‌کالکوژنیدهای فلزات واسطه (TMDC) با گاف‌های نواری مستقیم، افق جدیدی در کاربری این مواد در فوتونیک و الکترواپتیک ایجاد کرده است. وجود گاف نواری باعث جذب اپتیکی چشمگیر این لایه‌ها در دستگاه‌های فوتولتائیک می‌شود. قرارگیری این لایه‌ها روی زیرلایه به علت بازتاب‌های متوالی، بر طیف جذب اثر می‌گذارد. به طور متداول، از SiO₂ یا Si و یا ترکیب آنها به عنوان زیرلایه برای این تک لایه‌ها استفاده می‌شود. در این مقاله با استفاده از روش ماتریس انتقال، طیف جذب تک لایه‌های TMDC شامل MoSe₂، WSe₂، MoS₂ و WS₂ با حضور زیرلایه SiO₂/Si و یا SiO₂/Si دوتایی با ضخامت‌های مختلف لایه SiO₂ بررسی شد. ضخامت 90 نانومتر لایه SiO₂ در زیرلایه دوتایی به عنوان ضخامت بهینه انتخاب شد؛ چرا که روند کلی جذب را تغییر نمی‌دهد و باعث افزایش جذب در بعضی نواحی طول موجی می‌شود.

واژگان کلیدی

لایه‌های دوبعدی TMDC، جذب، زیرلایه، روش ماتریس انتقال، ثابت گذردهی لورنتس.

مقدمه

تک لایه‌های دی‌کالکوجنایدی فلزات واسطه¹ (TMDC) با فرمول شیمیایی MX_2 ($M=Mo, W; X = S, Se$)، دارای گاف‌های نواری مستقیم در ناحیه مادون قرمز نزدیک و مرئی هستند [1]. جذب نوری این تک لایه‌ها از طریق انتقال مستقیم بین نوار ظرفیت و نوارهای رسانش است که توجه زیادی را به عنوان منابع تک فوتون بر اساس گاف مستقیم جلب کرده است [2]. از این مواد می‌توان در دستگاه‌های فوتونیک، همچون تعدیل‌کننده‌ها²، سلول‌های خورشیدی و فوتوکاتالیست‌ها³ با جذب نور بالا در محدوده گسترده‌ای از طول موج استفاده کرد که می‌تواند در کاربردهای اپتوالکترونیک و فوتولتائیک مفید باشد [3-4].

به منظور طراحی و شبیه‌سازی دستگاه‌های اپتوالکترونیک ساخته شده با هر یک از TMDC های دو بعدی و توصیف برهم‌کنش‌های نور- ماده، به دانستن ثابت گذردهی الکتریکی مختلط آنها نیاز است [5] که نقطه اتصال میان ویژگی‌های اپتیکی، طیف جذب و عبور و بازتاب، تجربی و تئوری ایجاد می‌کند. روش مرسوم برای محاسبه ثابت گذردهی الکتریکی مختلط تک لایه‌های نیم‌رسانای TMDC، روش لورنتس می‌باشد [6].

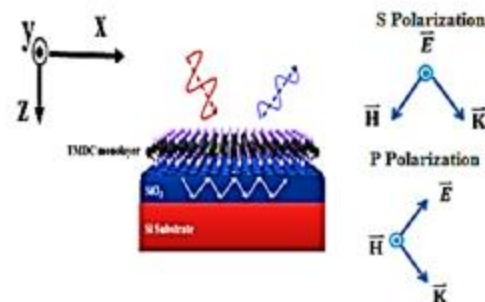
تهیه تک لایه‌های TMDC در حالت معلق⁴ امکان‌پذیر نیست؛ بنابراین ویژگی‌های اپتیکی‌شان باید در حضور زیرلایه بررسی شود. وجود زیرلایه به دلیل بازتاب‌های متوالی، روی جذب ساختار اثر می‌گذارد. به طور متداول از Si و SiO_2 به عنوان زیرلایه برای تک لایه‌های TMDC استفاده می‌شود [7-9]. تک-لایه‌های TMDC روی زیرلایه SiO_2 و Si، رنگ‌های مختلفی را نشان می‌دهند. از آنجایی که رنگ این تک لایه‌های بسیار نازک (ضخامت چند دهم نانومتر) تحت تاثیر طیف بازتاب ساختار ترکیب شده تک لایه و زیرلایه هستند، زیرلایه تاثیر بسیار زیادی بر رنگ لایه TMDC می‌گذارد و این ویژگی سبب شناسایی هرچه بهتر تک لایه‌ها در ساختار می‌شود [10].

لایه نشانی این تک لایه‌ها بر روی زیرلایه، میزان جذب ساختار را کاهش می‌دهد که در کاربری‌های فوتولتائیک مناسب نیست. برای رفع این مشکل از زیرلایه‌های دوتایی در پژوهش‌های تجربی استفاده می‌شود که لازم است ضخامت بهینه لایه میانی تعیین شود.

در این مقاله با استفاده از گذردهی این مواد به روش لورنتس، طیف جذب با روش ماتریس انتقال⁵، TMM، [11] به دست می‌آید. طیف جذب تک لایه‌های TMDC شامل $MoSe_2$ ، MoS_2 ، WSe_2 و WS_2 با حضور زیرلایه SiO_2/Si با ضخامت‌های مختلف لایه میانی SiO_2 بررسی و تاثیر مهم ضخامت زیرلایه میانی بر جذب نشان داده می‌شود.

تئوری

ساختار مورد بررسی، یک تک لایه از TMDC ها شامل $MoSe_2$ ، MoS_2 ، WSe_2 و WS_2 و زیرلایه دوتایی SiO_2/Si اسن که ضخامت لایه SiO_2 متغیر است. نور فرودی به صورت عمود از سمت هوا به ساختار تابانده می‌شود. در شکل 1 این ساختار نشان داده شده است.



شکل 1. ساختار مورد بررسی شامل تک لایه TMDC و زیرلایه دوتایی SiO_2/Si . بردارهای میدان الکتریکی و مغناطیسی برای دو قطبش TE و TM در شکل نشان داده شده است.

نور فرودی به صورت عمود از سمت هوا به ساختار تابانده می‌شود. بردارهای میدان الکتریکی و مغناطیسی برای دو قطبش TE و TM در شکل نشان داده شده است.

جذب ساختار بالا، با استفاده از روش ماتریس انتقال، TMM، به دست می‌آید. لایه‌ها به صورت موازی در راستای

1. Transition Metal Dichalcogenides (TMDC)
2. Modulators
3. Photocatalyst
4. Suspended

لایه‌های MoSe_2 ، WSe_2 ، MoS_2 و WS_2 به ترتیب برابر $0/646$ ، $0/649$ ، $0/615$ و $0/618$ نانومتر است [5]. گذردهی مواد TMDC با استفاده از روش لورنتس در مرجع [6] به دست آمده است که به صورت

$$\epsilon_{\text{TMDC}} = \epsilon_{\text{real}} + i\epsilon_{\text{imag}} \quad (5)$$

نمایش داده می‌شود. ϵ_{real} و ϵ_{imag} به ترتیب قسمت حقیقی و موهومی ثابت گذردهی هستند. همچنین ضریب شکست مختلط مواد با استفاده از رابطه

$$N(\lambda) = n + ik = \sqrt{\epsilon_{\text{TMDC}}(\lambda)} \quad (6)$$

به دست می‌آید که n و k به ترتیب ضریب شکست و ضریب خاموشی ماده نامیده می‌شود. ضریب شکست Si و SiO_2 از مرجع [12 و 13] گرفته شده است.

با استفاده از ماتریس M ضرایب فرنل به صورت

$$r = -\frac{M_{21}}{M_{22}} \quad (7)$$

$$t = M_{11} + \frac{M_{12} \times (-M_{21})}{M_{22}} \quad (8)$$

به دست می‌آیند و بازتاب و عبور و جذب به صورت

$$\begin{aligned} R &= |r|^2 \\ T &= \frac{n_{\text{Si}}}{n_0} |t|^2 \end{aligned} \quad (9)$$

$$A = 1 - R - T$$

محاسبه می‌شود.

نتایج

برای یافتن ویژگی‌های اپتیکی در روش TMM نیاز است که وابستگی ضریب شکست مختلط به طول موج دیده شود. به همین علت وابستگی ضرایب شکست و خاموشی بر حسب طول موج برای تک لایه‌های MoSe_2 ، WSe_2 ، MoS_2 و WS_2 به ترتیب در شکل 2- الف تا 2- د و برای لایه‌های SiO_2 و Si در شکل 3- الف و 3- ب نشان داده شده است. ویژگی‌های اپتیکی، طیف عبور، بازتاب و جذب، تک لایه‌های TMDC معلق یعنی برای حالتی که زیر لایه هوا

محور Z قرار دارند. در لایه j (j=1,2,3) میدان الکتریکی با رابطه:

$$E_n(z) = (a_j e^{izk_j z} + b_j e^{-izk_j z}) \hat{e}_y \quad (1)$$

داده می‌شود. \hat{e}_y بردار واحد در جهت y است و k_{jz} مولفه Z بردار موج در محیط لام است که به علت تابش عمود نور، بردار موج تنها دارای مولفه Z است، $N_j \vec{k}_j = k_{jz} = \frac{2\pi}{\lambda} N_j$ و \vec{k}_j و N_j ضریب شکست مختلط هر محیط است. مرز اول یعنی مرز بین هوا و تک لایه TMDC در $z=0$ فرض می‌شود. با اعمال شرایط مرزی، پیوستگی مولفه مماسی میدان الکتریکی و مغناطیسی، ضرایب میدان در لایه هوا (1) و زیر لایه Si (3) از طریق ماتریس انتقال M به صورت زیر

$$\begin{bmatrix} a_1 \\ b_1 \end{bmatrix} = M \begin{bmatrix} a_3 \\ b_3 \end{bmatrix} \quad (2)$$

به یکدیگر مرتبط می‌شوند که ماتریس M در ساختار سه لایه‌ای طبق رابطه

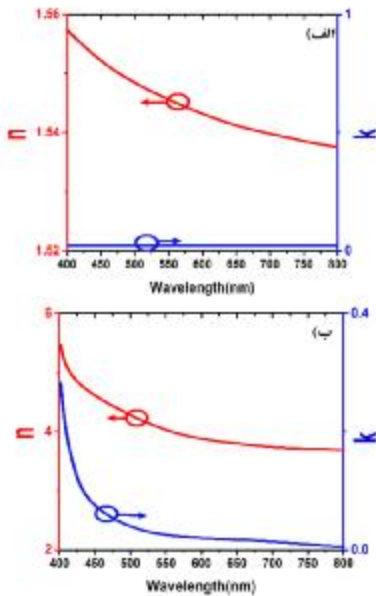
$$M = A \times M_{\text{SiO}_2} \times M_{\text{TMDC}} \times B \quad (3)$$

به دست می‌آید که در آن ماتریس‌های A، M_{SiO_2} ، M_{TMDC} و B به ترتیب ماتریس عبور نور از مرز هوا به ساختار دوبعدی، ماتریس انتشار موج در تک لایه TMDC، ماتریس انتشار موج در زیرلایه میانی SiO_2 و ماتریس عبور نور از مرز SiO_2 به Si است که به صورت

$$\begin{aligned} B &= \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ n_0 & -n_0 \end{bmatrix} \\ M_{\text{TMDC}} &= \begin{bmatrix} \cos(k_m d_m) & i \frac{\sin(k_m d_m)}{n_m} \\ in_m \sin(k_m d_m) & \cos(k_m d_m) \end{bmatrix} \\ M_{\text{SiO}_2} &= \begin{bmatrix} \cos(k_a d_a) & i \frac{\sin(k_a d_a)}{n_a} \\ in_a \sin(k_a d_a) & \cos(k_a d_a) \end{bmatrix} \\ A &= \frac{-1}{2n_s} \begin{bmatrix} -n_s e^{-ik_s z} & -e^{-ik_s z} \\ -n_s e^{ik_s z} & e^{ik_s z} \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (4)$$

تعریف می‌شود [11] که n_s ، n_a ، d_m و d_a به ترتیب ضریب شکست Si، ضریب شکست SiO_2 ، ضخامت تک لایه TMDC و ضخامت زیرلایه میانی SiO_2 است. ضخامت تک

با توجه به قوانین اسنل و بزرگ بودن ضریب شکست زیرلایه (Si و SiO_2) نسبت به هوا، وجود زیرلایه تکی باعث کاهش جذب نسبت به حالت معلق (حالتی که زیرلایه هوا باشد) می‌شود. این امر باعث کاهش تشخیص چند لایه ساختار در کارهای تجربی می‌شود. در نتیجه نیاز به زیرلایه‌ای داریم که باعث کاهش جذب نشود تا قدرت شناسایی تک لایه در ساختار از بین نرود.

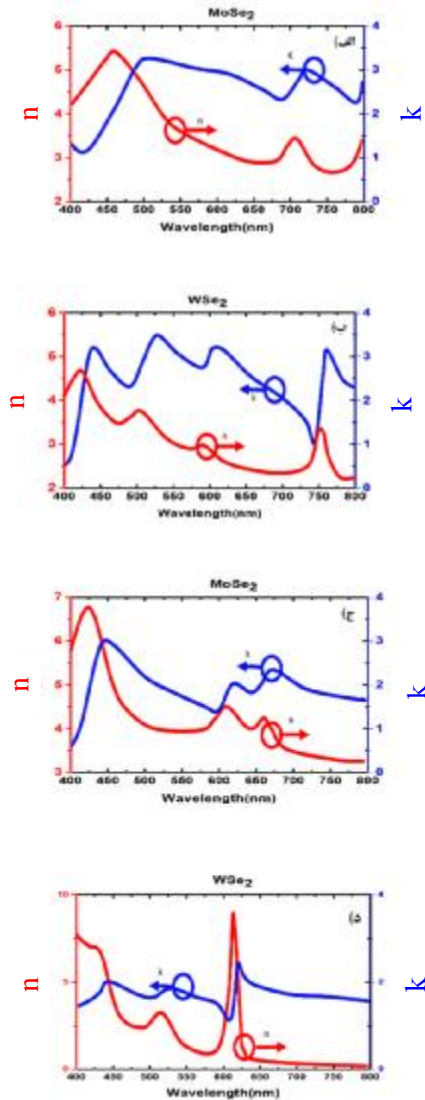


شکل 3. قسمت موهمومی (k) و حقیقی (n) ضریب شکست لایه‌های (الف) SiO_2 و (ب) Si بر حسب طول موج

در زیرلایه دوتایی (SiO_2/Si)، همان طور که در شکل 1 نشان داده شده است، به علت بازتاب‌های متوالی در لایه میانی SiO_2 ، بازگشت نور به لایه TMDC افزایش یافته و منجر به افزایش جذب در ساختار می‌شود. در نتیجه برای داشتن جذب بالا و تشخیص هرچه بهتر ماده در ساختار، استفاده از زیرلایه SiO_2/Si می‌تواند مطلوب‌تر از استفاده SiO_2 به عنوان زیرلایه تکی باشد. در ادامه با انتخاب چند ضخامت برای این لایه به بررسی تاثیر تغییر ضخامت آن در زیرلایه دوتایی SiO_2/Si بر جذب کلی ساختار می‌پردازیم.

در شکل 5، طیف جذب هر یک از تک لایه‌های MoSe_2 ، WSe_2 ، MoS_2 و WS_2 در حالت معلق و با حضور زیرلایه‌های SiO_2/Si و SiO_2 با ضخامت‌های مختلف 50، 90، 100، 300 نانومتر برای لایه میانی SiO_2 برای مقایسه نشان داده شده است. با توجه به شکل 5، مشاهده می‌شود تغییر

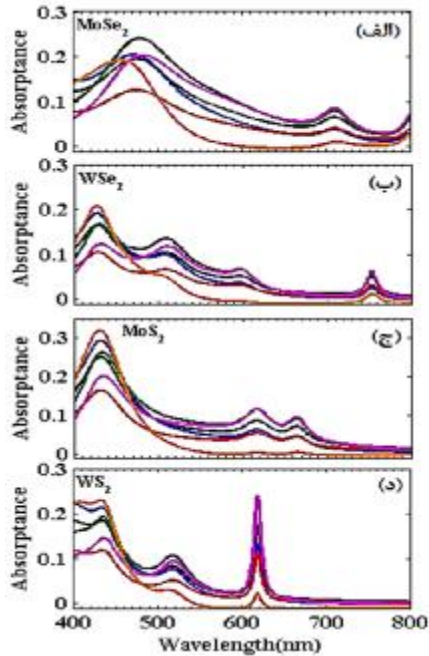
باشد، در شکل 4 نشان داده شده است [6]. میزان بازتاب در کل بازه طول موج مرئی تقریباً صفر است؛ در نتیجه با افزایش جذب، عبور کاهش می‌یابد. با توجه به وابستگی جذب اپتیکی به قسمت موهمومی گذردهی لایه‌ها و بزرگ بودن ϵ_{imag} تک لایه‌ها در ناحیه مرئی نسبت به هوا، رفتار جذب ساختار تحت تاثیر قسمت موهمومی گذردهی تک لایه‌های TMDC، ϵ_{imag} ، قرار می‌گیرد و در فرکانس‌های تشدید، پیک‌های جذب مشاهده می‌شود.



شکل 2. قسمت موهمومی (k) و حقیقی (n) ضریب شکست تک لایه‌های (الف) MoSe_2 ، (ب) WSe_2 ، (ج) MoS_2 و (د) WS_2 بر حسب طول موج

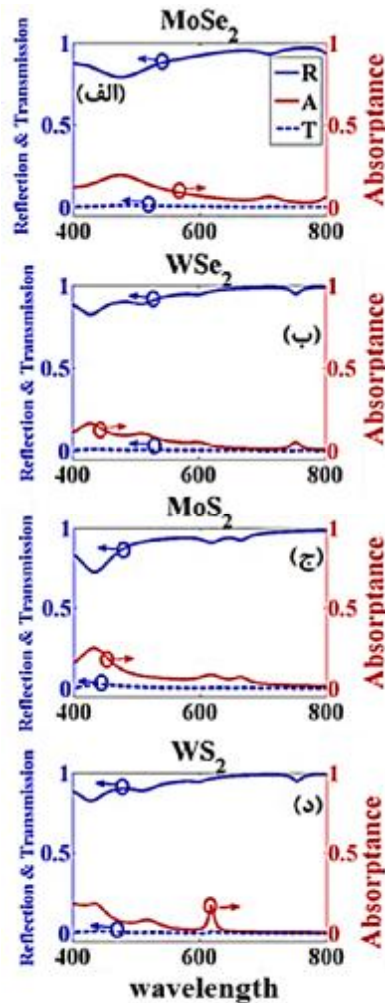
بحث و نتیجه‌گیری

در این مقاله ثابت گذردهی تک لایه‌های TMDC با روش لورنتس محاسبه و طیف جذب ساختار با استفاده از روش ماتریس انتقال، TMM، به دست آمد. طیف جذب تک لایه‌های TMDC شامل MoSe_2 ، MoS_2 ، WSe_2 و WS_2 با حضور زیرلایه دوتایی SiO_2/Si با ضخامت‌های مختلف لایه SiO_2 بررسی شده است. ضخامت زیرلایه میانی (SiO_2) تاثیر به سزایی بر جذب و شناسایی این مواد دارد. ضخامت 90 نانومتر لایه SiO_2 ، روند کلی طیف جذب (نسبت به حالت معلق) را تغییر نداده و باعث افزایش جذب در بعضی نواحی طول موجی نیز شده است؛ در نتیجه ضخامت 90 نانومتر برای لایه SiO_2 نسبت به سایر ضخامت‌ها برتری دارد. در اکثر پژوهش‌های تجربی نیز از همین ضخامت برای لایه SiO_2 در زیرلایه دوتایی SiO_2/Si استفاده می‌شود [14-16].



شکل 5. اثر ضخامت‌های مختلف لایه میانی SiO_2 بر طیف جذب تک لایه‌های الف) MoSe_2 ، ب) WSe_2 ، ج) MoS_2 و د) WS_2 بر حسب طول موج. بر حسب طول موج. رنگ قرمز زیرلایه تکی SiO_2 و رنگ‌های آبی، سبز، صورتی و نارنجی به ترتیب با ضخامت 50، 100 و 300 نانومتر برای لایه میانی SiO_2 در زیرلایه دوتایی SiO_2/Si و مقایسه آن با طیف جذب تک لایه معلق مشکی رنگ.

ضخامت لایه SiO_2 در زیرلایه دوتایی SiO_2/Si یک عامل مهم در تغییر طیف جذب است. زیرلایه‌ای مناسب‌تر است که باعث کاهش میزان جذب نشده و روند کلی جذب را در ناحیه طول موجی تغییر ندهد تا شناسایی ضخامت لایه با رنگ آن در ساختار دچار تغییری نشود. مشاهده می‌شود که ضخامت 90 نانومتر لایه SiO_2 نه تنها روند کلی طیف جذب (نسبت به حالت معلق) را تغییر نداده بلکه باعث افزایش جذب در بعضی نواحی طول موجی نیز شده است؛ در نتیجه ضخامت 90 نانومتر برای لایه SiO_2 نسبت به سایر ضخامت‌ها برتری دارد. در اکثر پژوهش‌های تجربی نیز از همین ضخامت برای لایه SiO_2 در زیرلایه دوتایی SiO_2/Si استفاده می‌شود [14-16].



شکل 4. طیف عبور، بازتاب و جذب تک لایه‌های الف) MoSe_2 ، ب) WSe_2 ، ج) MoS_2 و د) WS_2 بر حسب طول موج [6]

References

- [1] Seyler KL, Schaibley JR, Gong P, Rivera P, Jones A, Wu S, Yan J, Mandrus D, Yao W, Xu X. Electrical control of second-harmonic generation in a WSe₂ monolayer transistor. *Nature nanotechnology*. 2015; 10(5): 407-11.
- [2] Noori Y, Cao Y, Roberts J, Woodhead C, Bernardo-Gavito R, Tovee P, Young R. Photonic crystals for enhanced light extraction from 2D materials. *ACS Photonics*. 2016; 3(12): 2515-2520.
- [3] Yu Y, Hu S, Su L, Huang L, Liu Y, Jin Z, Purezky A, Geohegan D, Kim K, Zhang Y, Cao L. Equally efficient interlayer excitation relaxation and improved absorption in epitaxial and nonepitaxial MoS₂/WS₂ heterostructures. *Nano letters*. 2015; 15(1): 486-91.
- [4] Li X, Han W, Wu J, Qiao X, Zhang J, Tan P. Layer-number dependent optical properties of 2D materials and their application for thickness determination. *Advanced Functional Materials*. 2017; 27(19): 1604468.
- [5] Li Y, Chernikov A, Zhang X, Rigosi A, Hill H, Zande A, Chenet D, Shih E, Hone J, Heinz T. Measurement of the optical dielectric function of monolayer transition-metal dichalcogenides: MoS₂, MoSe₂, WS₂, and WSe₂. *Physical Review B*. 2014; 90(20): 205422.
- [6] Ansari N, Ghorbani F. Light absorption optimization in two-dimensional transition metal dichalcogenides van der Waals heterostructures. *JOSA B*. 2018; 35(5): 1179-85.
- [7] Ansari N, Moradi M. Optical absorption in air/monolayer MoS₂/S (S=SiO₂ or Si) trilayer stacks at oblique incidence. *Superlattices and Microstructures*. 2017; 104: 104-11.
- [8] Zhao P, Kiriya D, Azcatl A, Zhang C, Tosun M, Liu YS, Hettick M, Kang JS, McDonnell S, KC S, Guo J. Air stable p-doping of WSe₂ by covalent functionalization. *ASC nano*. 2014; 8(10): 10808-14.
- [9] Lien DH, Kang JS, Amani M, Chen K, Tosun M, Wang HP, Roy T, Eggleston MS, Wu MC, Dubey M, Lee SC. Engineering light outcoupling in 2D materials. *Nano letters*. 2015; 15(2): 1356-61.
- [10] Zeng J, Li J, Li H, Dai Q, Tie Sh, Lan Sh. Effects of substrates on the nonlinear optical responses of two-dimensional materials. *Optics express*. 2015; 23(25): 31817-27.
- [11] Zhan T, Shi X, Dai Y, Liu X, Zi J. Transfer matrix method for optics in Graphene layers. *Journal of Physics: Condensed Matter*. 2013; 25(21): 215301.
- [12] Green M, Keevers M. Optical properties of intrinsic silicon at 300 K. *Progress in Photovoltaics: Research and Applications*. 1995; 3: 189-192.
- [13] Ghosh G. Dispersion-equation coefficients for the reflective index and birefringence of calcite and quartz crystals. *Optics communications*. 1999; 163(1-3): 95-102.
- [14] Chen K, Wan X, Xu J. Epitaxial stitching and stacking growth of atomically thin transition-metal dichalcogenides (TMDCs) heterojunctions. *Advanced Functional Materials*. 2017; 27(19): 1603884.
- [15] Wang R, Chien H, Kumar J, Kumar N., Chiu H and Zhao H. Third-harmonic generation in ultrathin films of MoS₂. *ACS applied materials & interfaces*. 2013; 6(1): 314-8.
- [16] Kumar N, Najmaei S, Cui Q, Ceiballos F, Ajayan P, Lou J, Zhao H. Second harmonic microscopy of monolayer MoS₂. *Physical Review B*. 2013; 87(16): 161403.