مجله علوم و فنون هسته‌ای، جلد ۹۰، شماره ۴، زمستان ۱۳۹۸

بررسی اثر تهی‌جا در ساختار الکترونی بلور α-Al_2O_3

آنیتا عالیپور*[۱]، امیرعباس صبوری دودران[۲]، ارژنگ شاهور[۱]

۱. گروه آشکارسازی و دزیمتری پرتوها، پژوهشکده‌ی کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۳۱۴۶۵-۱۴۹۸، کرج ـ ایران

۲. گروه فیزیک، دانشکده‌ی علوم پایه، دانشگاه پیام نور، صندوق پستی: ۱۹۳۹۵-۳۶۹۷، تهران ـ ایران

مقاله‌ی پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۹۷/۱۱/۱۰ تاریخ پذیرش مقاله: ۹۸/۳/۲

چکیده: در این مطالعه ساختار الکترونی لوزوجهی (رمبوهدرال) α-Al_2O_3 مورد بررسی قرار گرفت. ساختار α- آلومینا متعلق به گروه فضایی $R\bar{3}c$ و لوزوجهی با دو واحد فرمولی (۱۰ اتمی) در سلول واحد اولیه است. هرچند ساختاری که بیش‌تر مورد استفاده قرار می‌گیرد، شش‌گوشه‌ای (هگزاگونال) شامل ۱۲ اتم آلومینیم و ۱۸ اتم اکسیژن، ۶ واحد فرمولی است. نقش نقص‌ها در شبکه‌ی بلوری به‌خصوص نقص تهی‌جا در این مقاله مورد بررسی قرار گرفته است. تغییرات ساختار نواری در نبود یکی از اتم‌های O یا Al ارزیابی‌شده است. محاسبه‌های انجام‌شده (با استفاده از کد شبیه‌سازی کوانتوم اسپرسو) نشان داد که α-Al_2O_3 یک گذار مستقیم در نقطه‌ی Γ دارد و گاف انرژی به‌دست آمده از نظریه‌ی تابع چگالی (DFT)، ۶٫۳ eV است. هم‌چنین تهی‌جای O بیش‌تر از تهی‌جای Al بر روی ساختار الکترونی بلور α-Al_2O_3:C تأثیرگذار بوده و در افزایش پاسخ این بلور به عنوان آشکارساز مؤثر است.

کلیدواژه‌ها: تهی‌جا، آلومینا، نظریه‌ی تابعی چگالی (DFT)

Investigation of vacancies effects on the electronic structure of α-Al_2O_3 crystal

A. Alipour*[1], A.A. Sabouri Dodaran[2], A. Shahvar[1]

1. Department of Radiation Detection & Dosimetry, Radiation Application Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 31465-1498, Karaj-Iran

2. Department of Physics, Faculty of Science, Payame Noor University, P.O.Box: 19395-3697, Tehran -Iran

Abstract: In this study, the electron structure of the α-Al_2O_3 rhombohedral graft has been investigated. The alpha-alumina structure belongs to the space group R3c and the rhombohedral with two units of formula (10 atoms) in the primary unit cell. Although the most widely used structure is hexagonal, it consists of 12 aluminum atoms and 18 atomic oxygen units, six units of formulas. The role of defects in the crystalline network, especially the vacancy defect, is investigated in this work. The band structure changes are evaluated in the absence of one of the O or Al atoms. The calculations showed that α-Al_2O_3 has a direct transition at Γ, and the energy gap obtained from the density functional theory (DFT) method is 6.3 eV. Also, the depletion effect of O is higher than that of Al on the crystal electron structure: α-Al_2O_3:C, and is useful in increasing the response of this crystal as a detector.

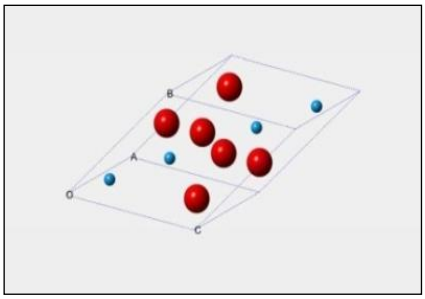
Keywords: Vacancy, α-Al_2O_3, Density functional theory (DFT)

*Email: aalipour@aeoi.org.ir

۱. مقدمه

ترکیب α-Al_2O_3، از خانواده‌ی سرامیک‌ها بوده و عایق (دی‌الکتریک) به شمار می‌رود. آلومینا بعد از الماس یکی از سخت‌ترین ترکیب‌ها است. که در صنایع فضایی، پزشکی، و در دزیمتری کاربردهای فراوانی دارد. از این بلور به عنوان آشکارساز پرتوهای یونیزه نیز استفاده می‌شود. گروه فضایی $\alpha - Al_2O_3$، $R\bar{3}c$ است. ساختار سلول واحد استفاده‌شده در محاسبه‌ها در شکل ۱ نشان‌داده شده است. ساختار الکترونی بلور با کد کوانتوم اسپرسو[1] شبیه‌سازی شده است. هم‌چنین در این پژوهش ساختار سلول واحد لوزوجهی است که با ۱۰ اتم اکسیژن و آلومینیم به نسبت O:Al ۶ به ۴ در نظر گرفته شده است.

افزودن ناخالصی (مانند کربن) این بلور را به یک آشکارساز بهتری تبدیل می‌کند. ورود ناخالصی یا برخورد پرتوهای یونیزه با بلور سبب تغییراتی مانند ایجاد نقص در ساختار بلور می‌شود. نقص‌ها در شبکه‌ی بلوری بیش‌ترین اثر را در تغییر خواص فیزیکی از جمله، رسانندگی، سختی، شفافیت و... دارا هستند. نقصی را که در اثر نبود یکی از اتم‌های بلور (O یا Al) یا هر دوی آن‌ها ایجاد می‌شود، نقص تهی‌جا می‌نامند. یکی از انواع تهی‌جاها، تهی‌جای شوتکی[2] است. نقص تهی‌جا، با تغییر در ترازهای اکسیتونی سبب تغییر در خاصیت‌های دزیمتری ترکیب می‌شود. از جمله‌ی هدف‌های این پژوهش، تعیین تغییرات حاصل از نبود یکی از اتم‌ها در ساختار الکترونی بلور است. در گذار مستقیم بازترکیب آن فرایندی تقریباً آنی است درصورتی که در گذار غیرمستقیم آنی نخواهد بود و مستلزم وجود عامل تحریک‌کننده‌ای مانند فونون، فوتون یا گرما است [۱].



شکل ۱. سلول واحد ساختار بلوری α-Al_2O_3 (آلومینا).

1- Quantum espresso
2. Schottky

۲. روش کار

در این بررسی با استفاده از نظریه‌ی تابعی چگالی[3] (DFT) ساختار الکترونی ترکیب α-Al_2O_3 مورد بررسی قرار گرفت. در این محاسبه‌ها از کد محاسباتی کوانتوم اسپرسو استفاده شد. در این کد که از تابع‌های موج تخت با رویکرد شبه پتانسیل استفاده‌شده است. برای به‌دست آوردن حالت پایه‌ی سیستم باید برخی از کمیت‌ها از جمله تقسیم‌بندی منطقه‌ی اول بریلوئن به روش مونخوست پک[4]، انرژی قطع تابع‌های موج و انرژی قطع چگالی بهینه‌سازی شوند (که در بررسی حاضر برای آن‌ها به ترتیب، مقدارهای: ۶×۶×۶، ۵۵۰ Ry و ۵۵ Ry به دست آمده است [۲]). در این محاسبه‌ها از تقریب چگالی موضعی[5] (LDA) با شبه پتانسیل پردو- زونگر[6] استفاده‌شده است. در این پژوهش با استفاده از مقدارهای بهینه‌شده و مشخصه‌های ساختاری بلور، ساختار الکترونی ترکیب α-Al_2O_3 خالص و همراه با تهی‌جاها محاسبه شده است.

۳. یافته‌ها و بحث

سلول واحد این ترکیب شش گوشه‌ای، دارای پارامترهای شبکه‌ی $c = ۱۲٫۹۷$ Å، $a = b = ۴٫۷$ Å، $\gamma = ۱۲۰^\circ$ و $\alpha = \beta = ۶۰^\circ$ است. یاخته‌ی بسیط آن لوزوجهی با پارامترهای شبکه‌ی؛ ۵٫۱۲۸ Å و زاویه‌های بین بردارهای شبکه‌ی ۵۵° است [۳]. در این محاسبه‌ها پهنای نوار گاف انرژی حاصله حدود ۶٫۳eV است، که با مقدارهای گزارش‌شده در دیگر مقاله‌ها مطابقت دارد. نتیجه‌های نظری و تجربی در جدول ۱ درج شده است [۴].

جدول ۱. ساختار الکترونی α-Al_2O_3 خالص

روش‌ها	تقریب چگالی موضعی کار حاضر	تقریب چگالی موضعی نظری [۴]، [۵]، [۶]	تجربی [۷]، [۸]
پهنای گاف انرژی (eV)	۶٫۳	۶٫۵-۲٫۳	۱۰٫۸-۸٫۸

3. Density functional theory
4. Monkhrost pack
5. Local-density approximation
6. Perdew zinger

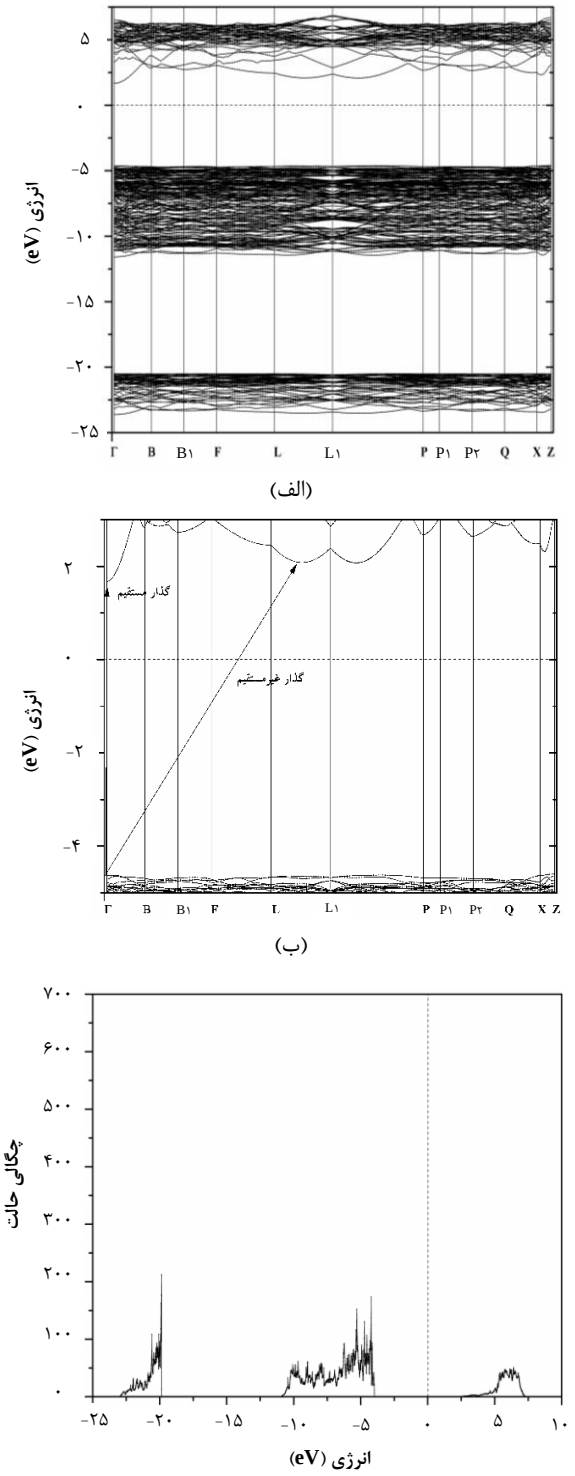
همان‌طور که انتظار می‌رود مقدار گاف انرژی به‌دست آمده با استفاده از نظریه‌ی تابعی چگالی (DFT) از مقدار تجربی آن کوچک‌تر است. برای بررسی خواص الکترونی از نمودارهای ساختار نواری و چگالی حالت[1] (DOS) استفاده می‌شود. در نمودارهای رسم‌شده (شکل ۲) تراز فرمی به نقطه‌ی صفر منتقل‌شده است. شکل ۲ ساختار الکترونی، گذارهای مستقیم و غیرمستقیم و چگالی حالت بدون تهی‌جای بلور α-Al_2O_3 را نشان می‌دهد.

در این مرحله ترکیب α-Al_2O_3 با تهی‌جای یک اتم Al بررسی شد. در این حالت یک سلول بزرگ[2] با ابعاد ۲×۲×۲، شامل ۸ سلول واحد لوزوجهی یا ۸۰ اتم اکسیژن و آلومینیم (۳۲ اتم Al و ۴۸ اتم O) برای شبیه‌سازی در نظر گرفته شد. یک چنین سلولی بررسی مستقل اثر تهی‌جاها را امکان‌پذیر می‌سازد.

شکل ۳ ساختار الکترونی، گذارها و چگالی حالت α-Al_2O_3 با نقص را نشان می‌دهد. در نمودارها سطح فرمی با خط چین مشخص شده است.

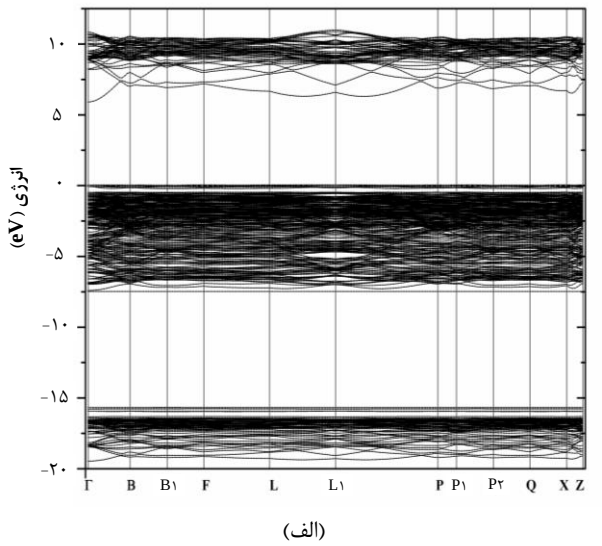
در مرحله بعدی اثر تهی‌جای O در شرایط مشابه با مرحله‌ی قبل بررسی شد. شکل ۴ ساختار الکترونی، گذارها و چگالی حالت α-Al_2O_3 با نقص O را نشان می‌دهد.

بررسی اثر پرتوهای یونیده بر روی بلور α-Al_2O_3 نیز حایز اهمیت است، زیرا می‌تواند سبب جابه‌جایی اتم‌ها و ایجاد تهی‌جاها شود. تهی‌جاها به نوبه‌ی خود سبب ایجاد ترازهای اکسیتونی در ناحیه‌ی بالای نوار ظرفیت (برای حفره) و در پایین نوار رسانش (برای الکترون) می‌شوند. این اثر در بروز خواص دزیمتری نقش مهمی ایفا می‌کند.

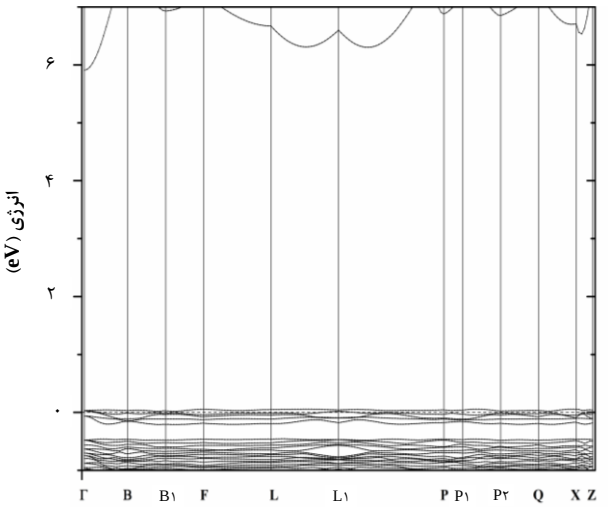


شکل ۲. الف) ساختار الکترونی، ب) گذارها و پ) نمودار چگالی حالت α-Al_2O_3.

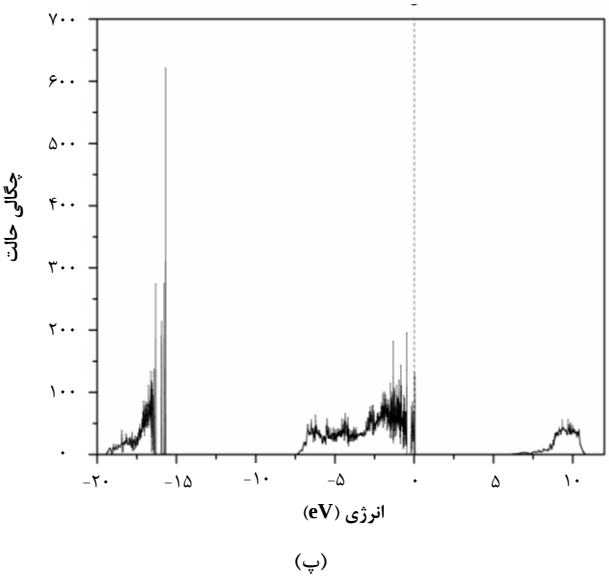
1. Density of states
2. Super cell



(الف)

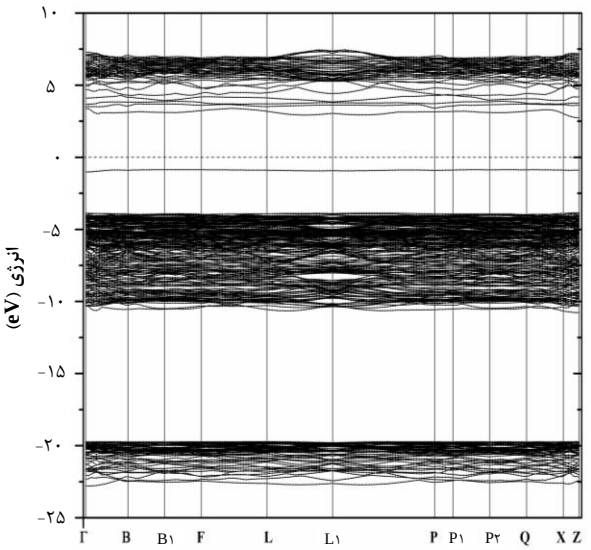


(ب)

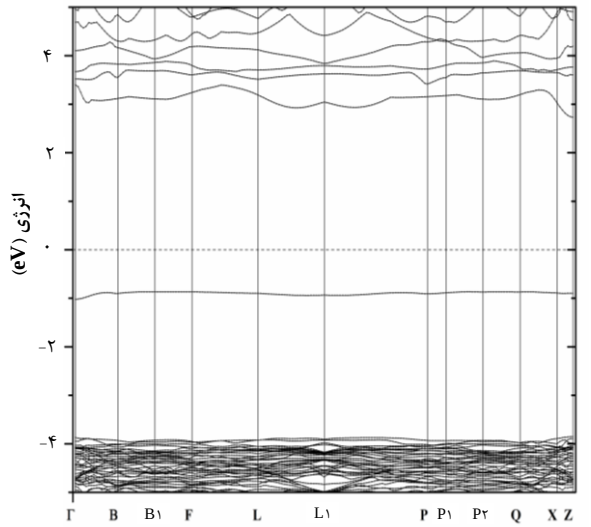


(پ)

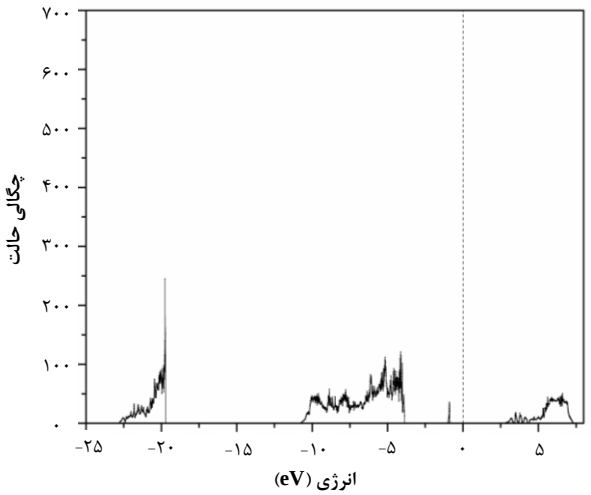
شکل ۳. الف) ساختار الکترونی، ب) گذارها و پ) چگالی حالت α-Al_2O_3 با نقص تهی‌جای Al.



(الف)



(ب)



(پ)

شکل ۴. الف) ساختار الکترونی، ب) گذارها و پ) چگالی حالت α-Al_2O_3 با نقص تهی‌جای O.

هم‌چنین وجود این تهی‌جاها سبب ایجاد تراز انرژی در نوار ممنوعه می‌شود. همان‌طورکه می‌دانیم یکی از روش‌های ایجاد تهی‌جا در بلور افزایش دمای بلور است و برای این‌که تهی‌جاهای ایجاد شده در دمای اتاق هم وجود داشته باشند باید دمای بلور به سرعت با دمای محیط یکی شود. بنابراین، با افزایش دمای بلور چگالی تهی‌جاها نیز افزایش می‌یابد. روش دیگر، بمباران بلور توسط پرتوهای یونیزه است. این مطلب بیان‌گر آن‌است که تهی‌جاها نقش مهمی در پاسخ بلورهای ترمولومینسان و هم‌چنین ایجاد ناحیه‌های نزدیک به خطی[1] و ایرخطی[2] دارند.

تهی‌جاها باعث افزایش پاسخ بلور α-Al_2O_3 نسبت به پرتوهای یونیزه می‌شوند. این‌که تعداد تهی‌جاهای ایجادشده به‌صورت تصادفی است، هشداری است که نایقینی اندازه‌گیری‌ها در TLD را به حداقل رسانده و از یک روند دمایی استفاده کنیم. بنابراین برای این که پاسخ آشکارساز در بیش‌ترین مقدار خود باشد، بلور را سریعاً سرد می‌کنند. و حتماً قبل از پرتودهی TLD به‌عنوان یک دزیمتر، بهتر است فرایند صفر شدن با قرار دادن در کوره، و نه از طریق خوانش توسط قرائت‌گر، صورت گیرد، چرا که با خوانش TLD توسط قرائت‌گر ساختار نواری بلور و تعداد تهی‌جاها منظم نمی‌شود و به حالت اولیه بر نمی‌گردد. این امر پاسخ آشکارساز را تغییر می‌دهد. بنابراین، باید فرایند صفر کردن TLD قبل از پرتودهی و بعد از هر خوانش انجام گیرد.

۴. نتیجه‌گیری

ترکیب α-Al_2O_3 به عنوان یک عایق خوب شناخته می‌شود. محاسبه‌های مبتنی برنظریه‌ی تابعی چگالی (DFT) برای ترکیب α-Al_2O_3، نیز آن را به عنوان یک عایق شفاف نور دیدگانی نتیجه می‌دهد. از مقایسه‌ی نمودارهای مربوط به ساختار الکترونی α-Al_2O_3 با تهی‌جای O، Al و ساختار الکترونی نمونه‌ی خالص مشاهده می‌شود که تهی‌جای Al تغییر زیادی در لبه‌ی نوار رسانش ایجاد نکرده و ترازهایی نزدیک به نوار ظرفیت ایجاد می‌کند. در صورتی که تغییرات در لبه‌ی رسانش برای تهی‌جای O زیاد است ولی تغییر چندانی در پهنای نوار ممنوعه نمی‌دهد و یک تراز در زیر انرژی فرمی ایجاد خواهد کرد. فاصله‌ی انرژی این تراز از نوار ظرفیت ۲٫۹eV و از نوار رسانش ۳٫۴eV است. بنابراین، می‌توان نتیجه گرفت که این تراز انرژی، تراز اکسیتونی فرنکل است.

با پرتودهی نمونه نیز ترازهای اکسیتونی بیش‌تری ایجاد می‌شود که این امر سبب ابرخطی شدن منحنی پاسخ بلور نسبت به مقدار دز است.

مراجع

1. C. Keith, *Introduction to Solid State Physics*, Solid State, Mercer Center, 251-256 (1969).
2. Hendrik, J. Monkhorst, James, *Pack special points for Brillouin-zone integration*, Phys. Rew, **13**(12), (1976) H.
3. T.V. Perevalov, et al. *Electronic Structure of α-Al_2O_3: Ab Initio Stimulations and Comparison with Experiment*, JETP Letters, **85**(3), 165-168 (April 2007).
4. H. Salehi, *Investigation of the Structure of Energy Bands in α-Al2O3 Crystal Using Basic Principles; Shahid Chamran University of Ahvaz*, Journal of Materials Engineering, **2**(2) 145-150 (2010).
5. I.I. Oleinik, E. Yu, *Tsymbal and D.G.pettifor, Structural of Electronic properties of Co/Al2O3/Co magnetic tunnel junction from first principle Phys*.Rev.B62, 3952 published Aug. (2000).
6. J.M. Dantas, A.F. Lima, M.V. Lalie, *Effects of Transition Metal Impurities in alpha Alumina: a Theoretical Study*, Journal of Physics, Conf. **249** (1), (2010).
7. Y. Yordshahyan, C. Ruberto, B. Lundqvist, *Theoretical Structure Determination of a Complex Material: κ-Al2O3*, J. Am. Ceram, Soc **82** (6) 1365-1380 (2004).
8. W. Tews, R. Gundler, Phys.State.Stat.Sol **109**, 255 (1982).

استناد به این مقاله

آنیتا عالیپور، امیرعباس صبوری دودران، ارژنگ شاهور (۱۳۹۸)، بررسی اثر تهی‌جا در ساختار الکترونی بلور α-Al_2O_3، ۹۰، ۵۷-۶۱

DOI: 10.24200/nst.2020.1071
Url: https://jonsat.nstri.ir/article_1071.html

1. Sub Linear
2. Super Linear