

بررسی اثر تهی‌جا در ساختار الکترونی بلور $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ آنیثا 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 - ایران

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

مقاله‌ی پژوهشی

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

چکیده: در این مطالعه ساختار الکترونی لوزوجهی (رمبوهدرال) $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 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 ارزیابی شده است. محاسبات انجام‌شده (با استفاده از کد شبیه‌سازی کوانتوم اسپرسو) نشان داد که $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 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 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$: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 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ crystal

A. Alipour*¹, A.A. Sabouri Dodaran², A. Shahvar¹

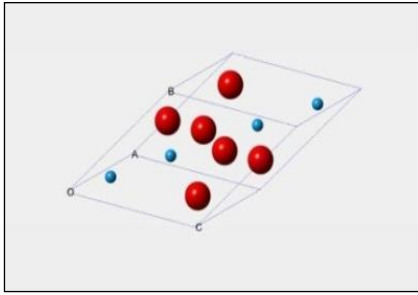
1. Department of Radiation Detection & Dosimetry, Radiation Application Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 31465-1498, Karaj-Iran

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 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 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 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 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: $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$:C, and is useful in increasing the response of this crystal as a detector.

Keywords: Vacancy, $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, Density functional theory (DFT)

*Email: aalipour@aeoi.org.ir

شکل ۱. سلول واحد ساختار بلوری $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (آلومینا).

۲. روش کار

در این بررسی با استفاده از نظریه‌ی تابعی چگالی^۳ (DFT) ساختار الکترونی ترکیب $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ مورد بررسی قرار گرفت. در این محاسبات از کد محاسباتی کوانتوم اسپرسو استفاده شد. در این کد که از تابع‌های موج تخت با رویکرد شبه پتانسیل استفاده شده است. برای به‌دست آوردن حالت پایه‌ی سیستم باید برخی از کمیت‌ها از جمله تقسیم‌بندی منطقه‌ی اول بریلوئن به روش مونخوست پک^۴، انرژی قطع تابع‌های موج و انرژی قطع چگالی بهینه‌سازی شوند (که در بررسی حاضر برای آن‌ها به ترتیب، مقدارهای: $6 \times 6 \times 6$ ، 550 Ry و 55 Ry به دست آمده است [۲]). در این محاسبات از تقریب چگالی موضعی^۵ (LDA) با شبه پتانسیل پردو-زونگر^۶ استفاده شده است. در این پژوهش با استفاده از مقدارهای بهینه‌شده و مشخصه‌های ساختاری بلور، ساختار الکترونی ترکیب $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ خالص و همراه با تهی‌جاها محاسبه شده است.

۳. یافته‌ها و بحث

سلول واحد این ترکیب شش گوشه‌ای، دارای پارامترهای شبکه‌ی $a = b = 4.7 \text{ \AA}$ ، $c = 12.97 \text{ \AA}$ ، $\alpha = \beta = 60^\circ$ و $\gamma = 120^\circ$ است. یاخته‌ی بسیط آن لوزوجهی با پارامترهای شبکه‌ی 5.128 \AA و زاویه‌های بین بردارهای شبکه‌ی 55° است [۳]. در این محاسبات پهنای نوار گاف انرژی حاصله حدود 6.3 eV است، که با مقدارهای گزارش شده در دیگر مقاله‌ها مطابقت

۱. مقدمه

ترکیب $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ، 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 یوننده نیز استفاده می‌شود. گروه فضایی $R\bar{3}c$ ، $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ است. ساختار سلول واحد استفاده‌شده در محاسبات در شکل ۱ نشان داده شده است. ساختار الکترونی بلور با کد کوانتوم اسپرسو^۱ 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 یوننده 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^۲ 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 باز ترکیب آن فرایندی تقریباً آبی است در صورتی که در گذار غیرمستقیم آبی نخواهد بود و مستلزم وجود عامل تحریک‌کننده‌ای مانند فونون، فوتون یا گرما است [۱].

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

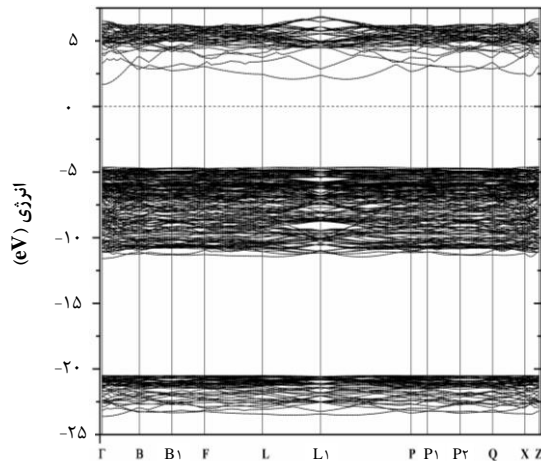
1- Quantum espresso
2. Schottky

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.

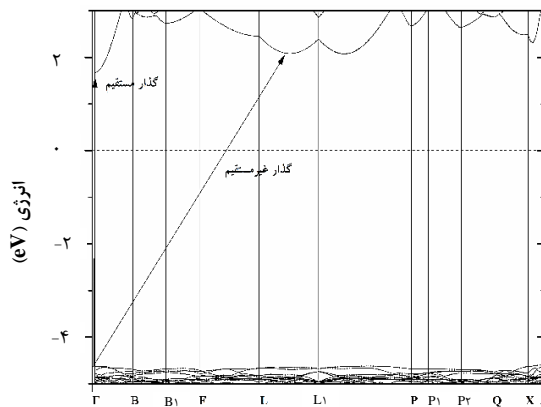
دارد. نتیجه‌های نظری و تجربی در جدول ۱ درج شده است [۴].

جدول ۱. ساختار الکترونی $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ خالص

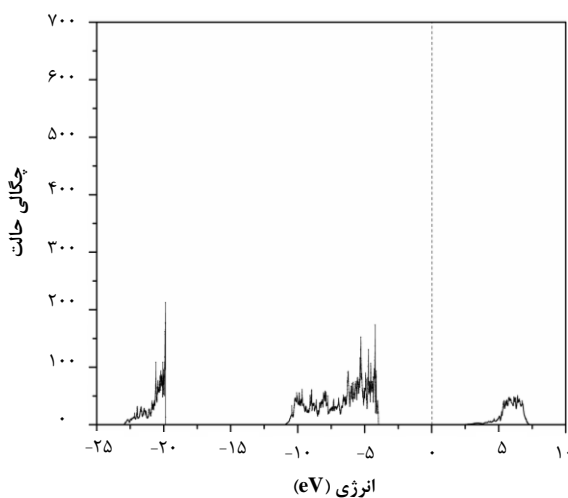
تجربی	تقریب چگالی	تقریب چگالی	روش‌ها
[۸]، [۷]	موضعی نظری	موضعی کار حاضر	
	[۶]، [۵]، [۴]		
۱۰،۸-۸،۸	۶،۲-۵،۳	۶،۳	پهنای گاف انرژی (eV)



(الف)



(ب)



(پ)

همان‌طور که انتظار می‌رود مقدار گاف انرژی به دست آمده با استفاده از نظریه‌ی تابعی چگالی (DFT) از مقدار تجربی آن کوچک‌تر است. برای بررسی خواص الکترونی از نمودارهای ساختار نوری و چگالی حالت^۱ (DOS) استفاده می‌شود. در نمودارهای رسم شده (شکل ۲) تراز فرمی به نقطه‌ی صفر منتقل شده است. شکل ۲ ساختار الکترونی، گذارهای مستقیم و غیرمستقیم و چگالی حالت بدون تهی‌جای بلور $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ را نشان می‌دهد.

در این مرحله ترکیب $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ با تهی‌جای یک اتم Al بررسی شد. در این حالت یک سلول بزرگ^۲ با ابعاد $2 \times 2 \times 2$ 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 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ با نقص را نشان می‌دهد. در نمودارها سطح فرمی با خط چین مشخص شده است.

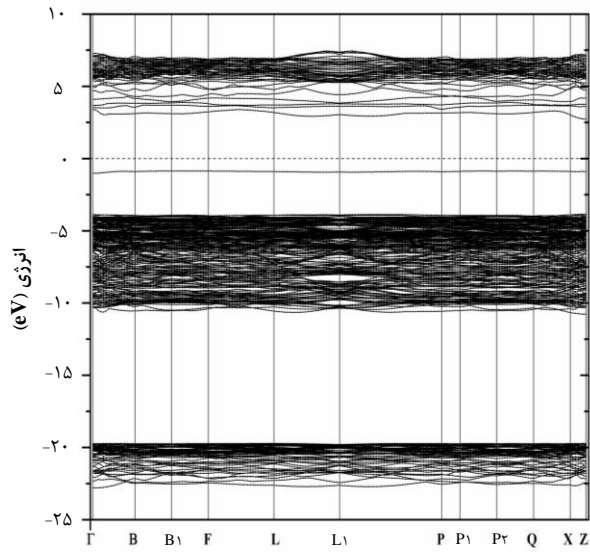
در مرحله بعدی اثر تهی‌جای O در شرایط مشابه با مرحله‌ی قبل بررسی شد. شکل ۴ ساختار الکترونی، گذارها و چگالی حالت $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ با نقص O را نشان می‌دهد.

بررسی اثر پرتوهای یوننده بر روی بلور $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ نیز حایز اهمیت است، زیرا می‌تواند سبب جابه‌جایی اتم‌ها و ایجاد تهی‌جاها شود. تهی‌جاها به نوبه‌ی خود سبب ایجاد ترازهای

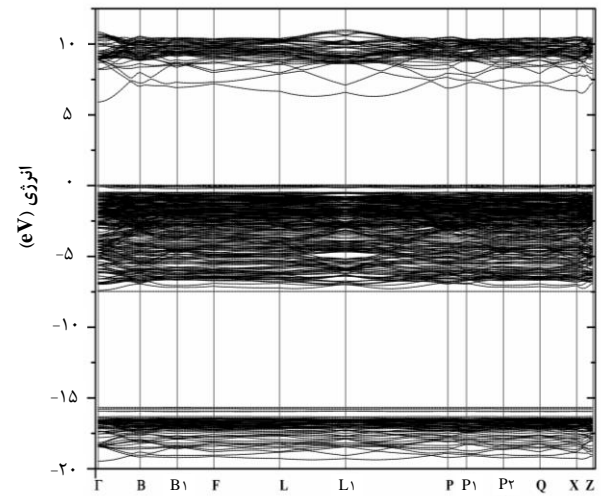
1. Density of states
2. Super cell

شکل ۲. الف) ساختار الکترونی، ب) گذارها و پ) نمودار چگالی حالت $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$

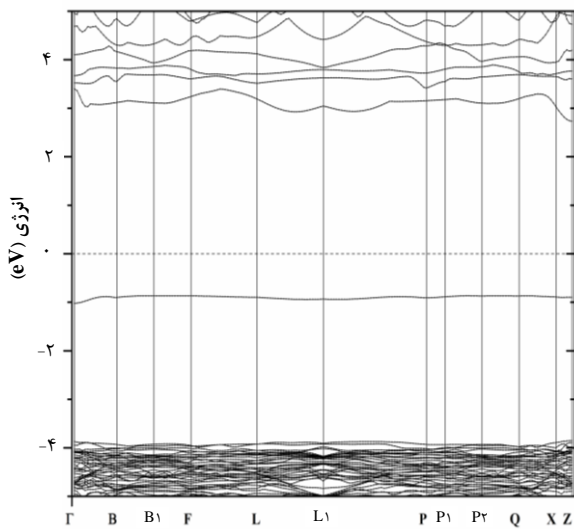
شکل ۳. الف) ساختار الکترونی، ب) گذارها و پ) چگالی حالت $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ با نقص تهی‌جا Al.



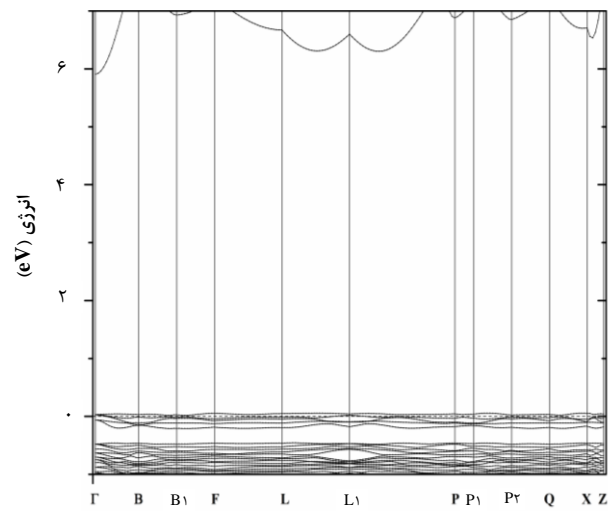
(الف)



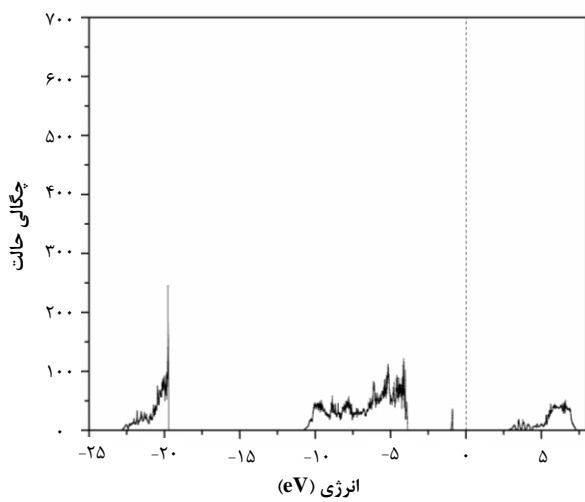
(الف)



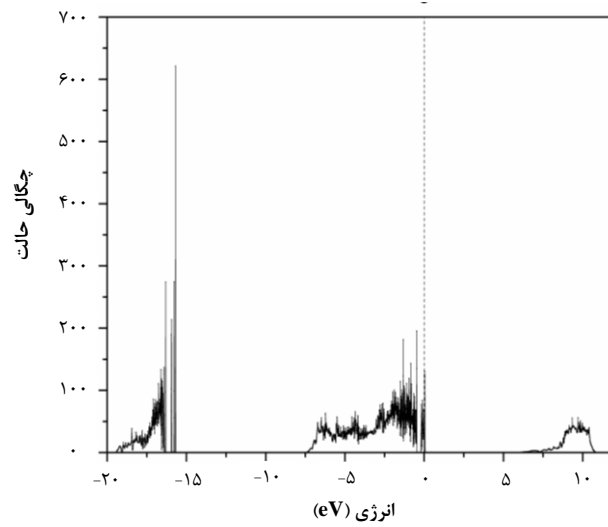
(ب)



(ب)



(پ)



(پ)

دیدگانی نتیجه می‌دهد. از مقایسه‌ی نمودارهای مربوط به ساختار الکترونی $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 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 2.9eV و از نوار رسانش 3.4eV 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. Rev., **13**(12), (1976) H.
3. T.V. Perevalov, et al. *Electronic Structure of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$: Ab Initio Simulations and Comparison with Experiment*, JETP Letters, **85**(3), 165-168 (April 2007).
4. H. Salehi, *Investigation of the Structure of Energy Bands in $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 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: $\kappa\text{-Al}_2\text{O}_3$* , J. Am. Ceram. Soc **82** (6) 1365-1380 (2004).
8. W. Tews, R. Gundler, Phys.State.Stat.Sol **109**, 255 (1982).

شکل ۴. الف) ساختار الکترونی، ب) گذارها و پ) چگالی حالت $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ با نقص تهی‌جای O.

هم‌چنین وجود این تهی‌جاها سبب ایجاد تراز انرژی در نوار ممنوعه می‌شود. همان‌طور که می‌دانیم یکی از روش‌های ایجاد تهی‌جا در بلور افزایش دمای بلور است و برای این‌که تهی‌جاها 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 یوننده است. این مطلب بیان‌گر آن است که تهی‌جاها نقش مهمی در پاسخ بلورهای ترمولومینسان و هم‌چنین ایجاد ناحیه‌های نزدیک به خطی^۱ و ایرخطی^۲ دارند.

تهی‌جاها باعث افزایش پاسخ بلور $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ نسبت به پرتوهای یوننده می‌شوند. این‌که تعداد تهی‌جاها ایجاد شده به‌صورت تصادفی است، هشدار می‌دهد که نایقینی اندازه‌گیری‌ها در TLD را به حداقل رسانده و از یک روند دمایی استفاده کنیم. بنابراین برای این‌که پاسخ آشکارساز در بیش‌ترین مقدار خود باشد، بلور را سریعاً سرد می‌کنند. و حتماً قبل از پرتودهی TLD به‌عنوان یک دزیومتر، 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 نوار 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 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ به‌عنوان یک عایق خوب شناخته می‌شود. محاسبه‌های مبتنی بر نظریه‌ی تابعی چگالی (DFT) برای ترکیب $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ، نیز آن را به‌عنوان یک عایق شفاف نور

1. Sub Linear
2. Super Linear

