

بیست و هشتمین کنفرانس اپتیک و فوتونیک ایران و چهاردهمین کنفرانس مهندسی و فناوری فوتونیک ایران، دانشگاه شهید چمران اهواز، خوزستان، ایران. ۱۴-۱۴ بهمن ۱۴۰۰



بررسی اثر ناخالصی سیلیکون بر خواص اپتیکی تکلایهی ScrC(OH) در چارچوب نظریهی تابعی چگالی

ريحان نجاتى پور، مهرداد دادستانى

دانشکدهی علوم، دانشگاه لرستان، خرم آباد، لرستان، ایران nejati.r@lu.ac.ir; dadsetani.m@lu.ac.ir

در چارچوب نظریهی تابعی چگالی، خواص اپتیکی ترکیب ۲(OH) کرد و بدون ناخالصی سیلیکون مورد مطالعه قرار میگیرد. این ترکیب در حضور ناخالصی سیلیکون، از یک نیمرسانا با گاف نواری ۷۵ ۷/۵۷ به یک عایق توپولوژیک با گاف نواری صفر و وارونی نواری تغییر ساختار و خواص میدهد. منشأ ساختارهای طیفی در ترکیب با و بدون ناخالصی سیلیکون، بهترتیب، انتقال الکترون از حالات p سیلیکون و p کربن به حالات d اسکاندیوم و s هیدروژن است. مقادیر ثابتهای اپتیکی در ساختار ناخالصشده نسبت به ساختار بدون ناخالصی افزایش می ابد.

کلید واژه- تکلایهی ۲۰(OH)، خواص اپتیکی، ناخالصی سیلیکون، نظریهی تابعی چگالی (DFT)، Mxeneها.

The study of the effect of silicon impurity on the optical properties of Sc₂C(OH)₂ monolayer by density functional theory

Reihan Nejatipour, Mehrdad Dadsetani

Faculty of Science, Lorestan University, Khoramabad, Lorestan, Iran nejati.r@lu.ac.ir; dadsetani.m@lu.ac.ir

In the density functional theory, optical properties of $Sc_2C(OH)_2$ with and without silicon impurity are studied. In the presence of silicon impurity, the structure and properties of this compound were changed from a semiconductor with a 0.57 eV band-gap to a topological insulator with a zero band-gap and a band inversion. The origin of spectral features in this compound with and without the silicon impurity is the electron transition from the p-Si and p-C to d-Sc and s-H, respectively. The values of optical constants are increased in the doped-structure with respect to the pure structure.

Keywords: Monolayer Sc₂C(OH)₂, Optical properties, Silicon impurity, Density functional theory (DFT), MXenes.

مقدمه

پس از کشف گرافین به عنوان اولین ماده دوبعدی، تلاشها جهت مطالعهی ساختارهای دوبعدی دیگر با خواصی که محدودیت های گرافین را جبران کنند گسترش یافت. این مطالعات و پیشرفتهای اخیر در نانوفناوری منجر به تولید ترکیباتی دوبعدی به نام MXenes با فرمول شیمیایی فلز واسطه، و X=کربن/نیتروژن) شد. پیوند ($M_{n+1}X_n$ شیمیایی ضعیف بین عناصر M-A در ساختار انبوههی تركيبات، با فرمول شيميايي M_{n+1}AX_n، با استفاده از اسیدهیدروفلوئوریک گسسته شده و بلافاصله گروههای عاملی G ،F و OH به سطوح Mxeneها متصل می شوند. خواص جالب الكترونى، مكانيكى، و گرمايى Mxeneها، نویدبخش کاربردهای صنعتی بسیاری برای این ساختارها شده است [۱]. ترکیب Sc_rC(OH) از جمله MXeneهای نیمرساناست که در حضور ناخالصیهای سیلیکون و ژرمانيوم يک عايق توپولوژيک است [۲]. دانش خواص الکترونی و بهویژه اپتیکی این ترکیب، لازمهی کاربردهای صنعتی و اپتوالکترونی آن است، و بنابراین، پژوهش حاضر به بررسی ویژگیهای اپتیکی آن میپردازد.

روش محاسبات

محاسبات حاضر در چارچوب نظریه یتابعی چگالی (DFT) بر پایه یروش امواج تخت بهبودیافته ی خطی با پتانسیل کامل (FPLAPW)، اعمال شده در کد WIEN2k است. تابعی تبادلی-همبستگی از تقریب شیب تعمیم یافته (GGA)، با تابعی پردو و همکاران [۳] محاسبه گردید. پارامتر R_{MT}K_{Max} برابر با ۴، بیشینه یعدد کوانتومی ه برای بسط توابع موج درون کرههای اتمی برابر ۱۰، و G_{Max} برای بسط توابع موج درون کرههای اتمی برابر ۱۰، و ۲۸۰ تنظیم شدند. اعمال ناخالصی با جایگزینی یک اتم کربن با سیلیکون در ابریاخته ای با ابعاد ۱×۳×۳ صورت گرفت. انتگرال گیری های ناحیه ی اول بریلوئن نیز برای محاسبات

ابریاخته با استفاده از روش تتراهدرون و فضای k با ابعاد ۱×۵×۵ در ناحیه کاهشناپذیر صورت گرفت. برای محاسبهی طیفهای اپتیکی از تقریب فاز کاتورهای (RPA) استفاده شد.

نتايج و بحث

در شکل ۱، ساختار لایهی $Sc_{r}C(OH)_{r}$ نشان داده شده است.



شکل ۱: نمای جانبی ساختار تکلایهی ScrC(OH).

طول پیوند Sc-C در ساختار خالص، Å ۲/۲۸ است درحالیکه جایگزینی سیلیکون طول Sc-Si را به Å ۲/۴۷۶ افزایش میدهد.

تحلیل چگالی حالتها و ساختار نواری ترکیب Sc_rC(OH)_۲ در شکل ۲ نشان میدهد که این تکلایه یک نیمرسانا با گاف نواری ۰/۵۷ eV است. مطابق با منحنی چگالی حالات این ترکیب، سهمهای عمدهی اربیتالی در نوارهای ظرفیت، شامل الکترونهای p اتم کربن و d اتم اسکاندیوم، و در نوار رسانش، شامل الکترونهای s اتم هیدروژن است، در حالیکه حضور سیلیکون این روند را تغییر میدهد. شکل ۳، نشان میدهد که در نوار ظرفیت ساختار ناخالص شده، حالتهای p اتم سیلیکون سهم عمدهی اربیتالی را به عهده دارند و این در تطابق با گزارش محاسباتی موجود است [7]. ضمن اینکه، گاف نواری به صفر کاهش مییابد، یعنی اربیتالهای p-Si منجر به افزایش انرژی بالاترین حالات اشغال شده می گردد. بعلاوه، حالات سطحی اشغالنشده یs-H در پایین ترین نوار رسانش ساختار خالص، در دومین حالت اشغالنشدهی بالای تراز فرمی ساختار ناخالص قرار می گیرند. حالات Sc-C-Si اکنون سهم عمده ی پایین ترین حالات اشغالنشده را بعنوان نوارهای سطحی تشکیل

میدهند. بنابراین، یک جابجایی نواری در نقطهی گاما نزدیک تراز فرمی مشهود است، که این ویژگیها ساختار ناخالصشدهی Sc_rC(OH)_۲ را یک عایق توپولوژیک معرفی مىكند.



شکل ۲: ساختار نواری و چگالی حالات ساختار Sc₇C(OH).



شکل ۳: ساختار نواری و چگالی حالات Sc_rC(OH)_۲ در حضور ناخالصی سيليكون.

در ادامه طیفهای اپتیکی ساختارهای با و بدون ناخالصی ScrC(OH)_۲ را مقایسه میکنیم. بدلیل تقارن ششگوشی، توابع اپتیکی این ترکیب دارای دو مؤلفهی مستقل xx و zz هستند. مطابق با شکلهای ۴ و ۵، ثابت دیالکتریک ساختار خالص در راستاهای x و z، بهترتیب ($\epsilon_1(\omega=0)$) ۴/۶۳ و ۳/۳۶ است، و این مقادیر در ساختار ناخالص به ۷/۷۷ و ۴/۰۸ افزایش می یابد. مقایسه ی روند کلی طیفها نشان میدهد که با افزودن ناخالصی، برای مولفه x (z) یک جابجایی آبی (قرمز) رخ میدهد. بعلاوه، ناهمسانگردی در پاسخ اپتیکی ترکیب مورد مطالعه مشهود است. تحلیل ساختار نواری نشان میدهد که بیشینههای طیفی در قسمت موهومی تابع دیالکتریک ((٤٤(٥)) ساختار خالص، ناشی از انتقالات ایتیکی از حالات p-C به حالات d-Sc و عمدتاً s-H است.



شکل ۴: قسمتهای حقیقی ((0)) و موهومی ((2)(0)) تابع دیالکتریک تركيب Sc_rC(OH)_۲.

مقایسهی طیفهای اپتیکی و تحلیل ساختار نواری ترکیبات با و بدون ناخالصی نشان میدهد که در ساختار ناخالص، سهم عمده در انتقالات اپتیکی حاصل از انتقال الکترونهای p-Si و عمدتاً s-H است.



شکل ۵: مقایسهی قسمتهای حقیقی (بالا) و موهومی (پایین) تابع دیالکتریک ترکیب ScrC(OH)۲ با و بدون ناخالصی سیلیکون.

تابع اتلاف انرژی الکترونی که مطابق با معادله مرتبط $\epsilon(\omega) = -\operatorname{Im}(1/\varepsilon(\omega))$ است، در شکل ۶ نمایش داده شده است. به دلیل اینکه هر بیشینه ناشی از انتقالات بیننواری در تابع اتلاف را میتوان به بیشینهی متناظر در تابع دیالکتریک نسبت داد، بهترتیب در هر دو مؤلفهی xx و zz تابع اتلاف متعلق به ساختار خالص (ناخالص)، بیشینههای اصلی اول در انرژیهای ۲/۳۳ و ۵/۹۱ (۵/۴۵ و ۶/۴۵) ناشی از انتقالات بیننواری است. به ازای مقادیر کوچک تابع دىالكتريك، تابع اتلاف انرژى داراى بيشينهاى اصلى موسوم به بیشینهی پلاسمونی است، و این بیشینه متعلق به اتلاف

انرژی آن دسته از الکترونهایی است که حین عبور از ماده، سبب برانگیختگی جمعی چگالی بار میشوند. ساختارهای طیفی اصلی در مولفههای xx و zz تابع اتلاف ترکیب خالص (ناخالص) بهترتیب در انرژیهای ۸/۵۵ و ۷۷ ۱۲/۱۷ (۹/۳۷ و ۱۳/۴۲ eV)، بیشینههای پلاسمونی هستند. بنابراین دادهها، ساختارهای اصلی طیفی در ترکیب ناخالصشده، نسبت به ترکیب خالص، در انرژیهای بالاتر رخ دادهاند.



شکل ۶: مقایسهی طیفهای اتلاف انرژی (بالا) و ضرایب بازتاب (پایین) ترکیب ScrC(OH)۲ با و بدون ناخالصی سیلیکون.

شکل ۶ نشان می دهد که بیشترین بازتاب به ازای انرژیهای ۱/۳۰ و ۲۷ ۲/۳۷ به ترتیب برای مولفه های xx و zz در ساختار خالص، و ۰/۰۶ و ۱/۹۱ در ساختار ناخالص رخ داده است. بنابراین، طیف بازتاب در ساختار ناخالص شده به سمت انرژی های کمتر متمایل است.

مطابق با شکل ۲، ضرایب شکست استاتیک، (n $(\omega=0)$ ، برای مؤلفههای xx و zz در ساختار بدون ناخالصی بهترتیب ۲/۱۵ و ۲/۸۳ و در ساختار ناخالص ۲/۸۵ و ۲/۰۲ است. بنابراین، ضریب شکست استاتیک در حضور ناخالصی سیلیکون در ترکیب $Sc_rC(OH)$ افزایش می یابد.

ضریب خاموشی یک ماده نشاندهنده ی میزان جذب پرتو الکترومغناطیسی توسط آن ماده است، بطوریکه اگر موج الکترومغناطیسی به آسانی از آن ماده عبور کند، ضریب خاموشی پایین و اگر به سختی در آن نفوذ کند، ضریب خاموشی بالاست. بیشینهها در مؤلفههای xx و zz ساختار

خالص در انرژیهای ۵/۶۱ و ۴/۴۶ و در ساختار دارای ناخالصی در انرژیهای ۲/۰۲ و ۶/۲۴ eV قرار دارند. بنابراین، نفوذ موج الکترومغناطیسی با فرکانسهایی در مقادیر یادشده، به درون مادهی مورد بررسی به سختی رخ خواهد داد.



شکل ۷: مقایسهی طیفهای ضرایب شکست (بالا) و خاموشی (پایین) ترکیب ScrC(OH)۲ با و بدون ناخالصی سیلیکون.

نتيجهگيرى

با تزریق سیلیکون، اربیتالهای p اتم کربن در نوار ظرفیت، با اربیتالهای p اتم سیلیکون جایگزین شده و یک جابجایی نواری در سطح فرمی ایجاد میشود. این تغییرات ساختاری، پاسخ اپتیکی ماده را نیز دستخوش تغییر میکند. علاوه بر جابجایی انرژی طیفهای اپتیکی، برهمکنش باریکهی نوری با ترکیب مورد مطالعه، موجب انتقال الکترون از حالتهای p اتم کربن در ساختار خالص و p اتم سیلیکون در ساختار ناخالص به حالتهای d اتم اسکاندیوم و عمدتاً s اتم هیدروژن می گردد.

مراجع

[1] M. Khazaei, A. Ranjbar, M. Aria, T. Sasaki, & S. Yunoki, "Electronic properties and applications of MXenes: a theoretical review" *J. Mater. Chem.* C, Vol. 5, pp. 2488-2503, 2017.

[2] E. Balcı, Ü.Ö. Akkuş, & S. Berber, "Doped Sc₂C(OH)₂ MXene: new type s-pd band inversion topological insulator", *J. Phys: Cond. Matter*, Vol. 30, pp. 155501-155512, 2018.

[3] J.P. Perdew, K. Burke, & M. Ernzerhof, "Generalized Gradient Approximation Made Simple", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 77, pp. 3865-3868, 1996.