

ساختار نوارهای انرژی در بلور $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ با استفاده از اصول اولیه

حمدا. صالحی*

گروه فیزیک، دانشگاه شهید چمران اهواز

چکیده در این مقاله ساختار نوارهای انرژی و چگالی حالت‌ها در بلور $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ با استفاده از روش امواج تخت تقویت شده خطی با پتانسیل کامل (FP-LAPW) در چارچوب نظریه تابعی چگالی (DFT) هوهنبرگ، کوهن و شم با تقریب شیب تعمیم یافته (GGA) محاسبه شده است. نتایج نشان می‌دهد $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ یک گاف نوری مستقیم در نقطه Γ به اندازه ۶/۳eV دارد که بیشترین سهم در نوار ظرفیت مربوط به اربیتال‌های ۲S و ۲P اکسیژن و در نوار رسانش مربوط به اربیتال‌های ۳S و ۳P آلومینیوم می‌باشد.

کلمات کلیدی نظریه تابعی چگالی، نوارهای انرژی، ساختار الکترونی، $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ، آلومینا، دریچه دی الکتریک.

Determination of the Electronic Structure of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ with First Principle Study

H. Salehi*

Department of Physics, Shahid Chamran University of Ahvaz, Ahvaz, Iran

Abstract In this work, the structure and density of state of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ were theoretically investigated. The calculations have been performed using a Full Potential-Linearized Augmented Plane Wave (FP-LAPW) method in the framework of Density Functional Theory (DFT) with various approximations using WIEN2k package. The calculated band structure shows a direct band gap 6.3eV at the point in the Brillouin zone. The calculated band structure is in good agreement with theoretical and experimental results.

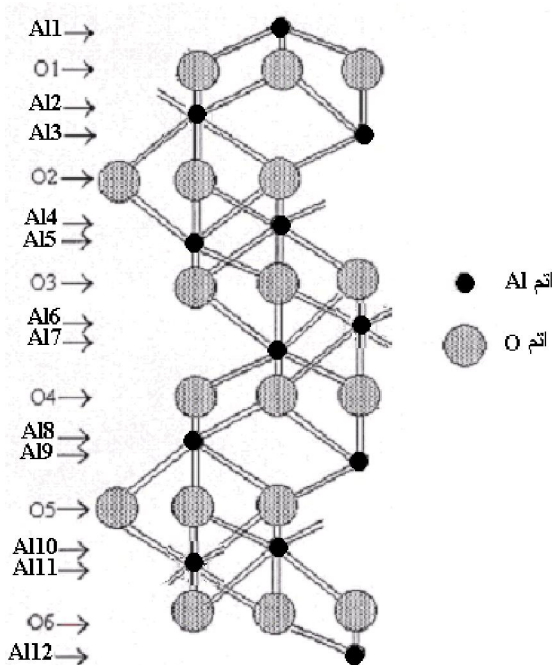
Keywords: Density Functional Theory, Band Gap, FP-LAPW, GGA.

*عهده‌دار مکاتبات

نشانی: استان خوزستان، اهواز، دانشگاه شهید چمران اهواز، گروه فیزیک.

تلفن: - دورنگار: - پیام‌نگار: salehi_h@scu.ac.ir.

۱- مقدمه

شکل ۱. یاخته بسیط $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$.

یکی از موادی که در حال حاضر به عنوان دريچه دی الکتریک جایگزین در حال بررسی است، Al_2O_3 است [۱،۲]. Al_2O_3 دارای گاف انرژی بزرگ و ثابت دی الکتریکی بیش از دو برابر مقدار مربوط به دی اکسید سیلیسیم است و می توان آن را مستقیماً و بدون تشکیل لایه میانی روی سلیکون نشانند [۳،۴].

Al_2O_3 با توجه به ثابت دی الکتریکی که دارد، به عنوان یک دريچه دی الکتریک میان مدت مطرح است. هر چند استفاده از دريچه دی الکتریکها در فاز بی ریخت مرجح است. گروه فضایی $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ، $R\bar{3}C$ می باشد. ساختار یاخته بسیط که در این محاسبات استفاده می شود در شکل ۱ نشان داده شده است.

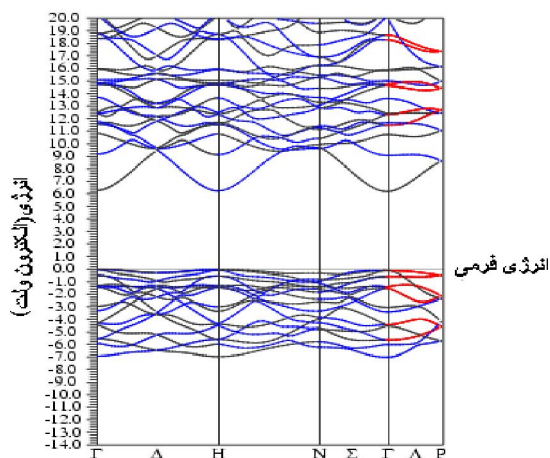
معمولاً ساختار بلوری آلومینا طوری است که از دو نوع جایگاه چهار وجهی و هشت وجهی تشکیل شده است که اتم های آلومینیم مراکز این جایگاهها را تشکیل می دهند. در این محاسبات فرض می شود که مکان های آلومینیم در فاز $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ بیشتر در جایگاه های هشت وجهی می باشند [۵]. بنابراین یاخته بسیط را بر مبنای هشت وجهی هایی در نظر می گیریم که اتم های آلومینیم در مراکز آنها و اتم های اکسیژن در گوشه های آن قرار گرفته اند. تعداد کل اتم ها در یاخته بسیط ۳۰ بوده که برای $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ خالص متشکل از ۱۸ اتم اکسیژن و ۱۲ اتم آلومینیم می باشد.

۲- نحوه انجام آزمایش

یکی از اهداف مهم در این محاسبات تعیین میزان دقت آنها می باشد. همچنین دقت باید به گونه ای باشد که از اتلاف زمان انجام محاسبات کامپیوتری نیز در حد امکان جلوگیری شود. با توجه به این که محاسبات به روش خود سازگار و برای مجموعه معینی از نقاط k در منطقه اول بریلوئن انجام

جدول ۱. نتایج محاسبه شده گاف نواری $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ با این روش و مقایسه با سایر روشها.

روشها	تجربی: [۵]	تجربی: [۱۳]	تجربی: [۱۲] (آلومینای آمورف)	نظری: [۱۱] (LDA)	نظری: [۱۰] (LDA)	FP-LAPW
گاف نواری (eV)	۱۰/۸	۸/۸	۸/۳	۵/۳	۶/۲	۶/۳



شکل ۲. ساختار نوار انرژی محاسبه شده برای $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$.

کوچک انتخاب شود حجم محاسبات افزایش می‌یابد بدون این که نتیجه خاصی حاصل شود و اگر هم بزرگ انتخاب شود کره‌ها با هم همپوشانی می‌کنند و در سیستم خطا ظاهر می‌شود. همگرایی را بر مبنای انرژی قرار دادیم که با ۸ تکرار و با اختلاف انرژی از مرتبه 10^{-6} ریدبرگ به این همگرایی رسیدیم. فاکتور ترکیب (Q) را در این روش برای تولید چگالی‌های جدید، جهت محاسبات خود-سازگار برابر $2/4$ انتخاب کردیم و تعداد 2470 تابع موج به دست آمده است. انرژی فرمی را به اندازه $E_F = 0/4MR_y$ به دست آورده و گستره انرژی را از 15 eV تا 15 eV در نظر گرفته شد. انرژی صفر را به عنوان مبداء انتخاب کردیم. مقیاس انرژی نیز بر حسب الکترون ولت می‌باشد. مبداء انرژی را به طور دلخواه به عنوان بیشینه نوار ظرفیت انتخاب می‌کنیم.

می‌گیرد، تعداد نقاط k و نیز اندازه ناحیه مورد استفاده در برنامه محاسباتی به پارامتر همگرایی، Rk_{max} ، بستگی دارد.

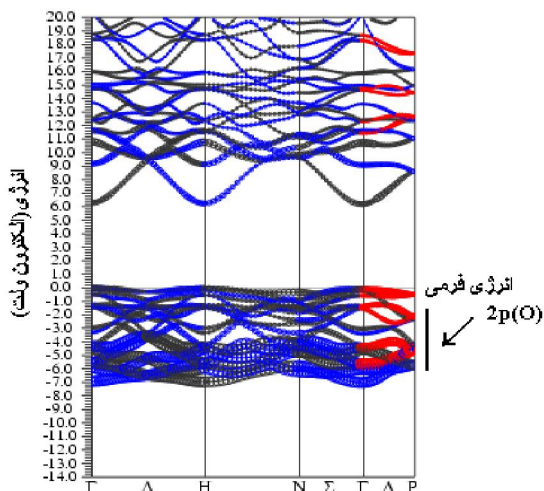
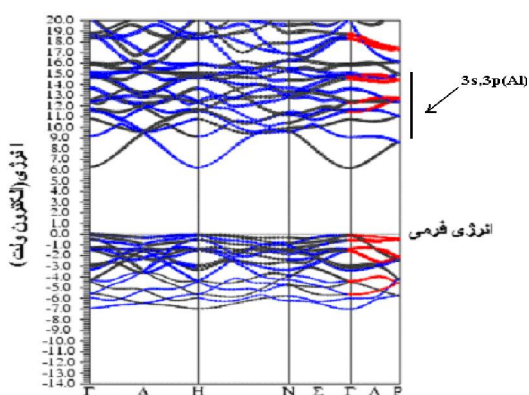
علاوه بر این، کمیت‌های دیگری نظیر ضرائب فوریه و تعداد توابع موج انتخاب شده در بسط تابع موج نیز به این پارامتر وابسته است. بنابراین، برای تعیین یک k مناسب، تغییرات Rk_{max} را قدم به قدم از 6 تا 9 با گام $0/5$ تغییر می‌دهیم و تعداد امواج تخت را که یک کمیت وردشی است، مورد بررسی قرار می‌دهیم. با انجام این کار مشخص شد که تغییری در ساختار نوازی مشاهده نمی‌شود اما تعداد ضرائب فوریه برای مینیمم بردار شبکه وارون تغییر می‌کند و با افزایش مقدار پارامتر همگرایی تعداد این ضرائب افزایش پیدا می‌کند. لذا، برای جلوگیری از اتلاف زمان محاسبات بهترین Rk_{max} برابر $8/2$ می‌باشد که اندازه انتخاب پایه را در این محاسبات کنترل می‌کند و $G_{max} = 14$ (بردار شبکه وارون) می‌باشد.

روش پتانسیل کامل با استفاده از امواج تخت بهبود یافته خطی در چارچوب نظریه تابعی چگالی با تقریب شیب تعمیم یافته و نرم افزار WIEN2k از ابزارهای مورد استفاده در این مقاله هستند [۶-۹]. در این تقریب علاوه بر این که انرژی تبادل همبستگی یک الکترون در نقطه r به طور موضعی با انرژی تبادل - همبستگی یک الکترون در یک گاز فرمی یکنواخت که دارای همان چگالی است داده می‌شود، شیب چگالی نیز در محاسبات وارد می‌شود و در نتیجه از آزادی بیشتری برای محاسبه انرژی تبادل همبستگی می‌توان بهره جست. در این تقریب از پارامترهای زیاد و از مقادیر بزرگ تجربی برای اتم‌ها و مولکول‌ها استفاده می‌شود و باعث دقیق‌تر شدن شکل تابعی انرژی همبستگی می‌شود. تعداد نقاط k مورد استفاده در ناحیه اول بریلوئن برابر 400 انتخاب شده است.

شعاع مافین‌تین آلومینیم و اکسیژن در $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ را برابر $1/8a.u$ در نظر می‌گیریم. این مقدار با توجه به طول پیوندها، شعاع کره اتمی و بیشینه بار داخل کره انتخاب می‌شود. اگر

۳- نتایج و بحث

۳-۱- ساختار نوارهای انرژی

شکل ۳. ساختار نوار انرژی $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ همراه با سهم اوربیتالهای اتم اکسیژن.شکل ۴. ساختار نوار انرژی $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ همراه با سهم اوربیتالهای اتم آلومینیوم.

سازگاری خوبی بین این نتایج و نتایج به دست آمده از روش‌های دیگر وجود دارد.

۳-۲- چگالی حالت‌ها

توزیع الکترون در طیف انرژی به وسیله چگالی حالت‌ها توصیف می‌شود. با استفاده از نتایج به دست آمده برای چگالی حالت‌ها، مقدار گاف انرژی به اندازه $E_g = 6.4\text{eV}$ به

با محاسبه ساختار نوارهای انرژی هر ماده می‌توان به خواص آن ماده پی برد. ساختار نوارهای انرژی $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ در راستای خطوط تقارنی مختلف و در تقریب GGA96 در شکل ۲ رسم شده است. در این نمودار مقیاس انرژی بر حسب الکترون ولت می‌باشد و مبداء انرژی در بیشینه نوار ظرفیت می‌باشد. شکل فوق یک گاف نواری مستقیم به اندازه $E_g = 6.4\text{eV}$ در نقطه Γ نشان می‌دهد. نقطه صفر الکترون ولت بر روی محور انرژی بیشترین اشغال را در تراز فرمی نشان می‌دهد.

برای جداسازی حالت‌های ظرفیت از مغزه انرژی مرز جدایی بین الکترون‌های ظرفیت و مغزه برابر 6Ryd در نظر گرفته شده است. در شکل، یک پاشندگی بزرگی از نوارها را مشاهده می‌کنیم. منشاء این پاشندگی می‌تواند به دلیل استفاده از تقریب شیب تعمیم یافته باشد. مشاهده می‌شود که مشارکت عمده در نوار ظرفیت بالایی مربوط به اوربیتال‌های $2p$ اکسیژن است در حالی که مشارکت عمده در ته نوار رسانش مربوط به اوربیتال‌های $3s$ و $3p$ آلومینیوم می‌باشد که در شکل‌های ۳ و ۴ نشان داده شده است.

حالت‌های $2p$ اکسیژن زیر تراز فرمی با منحنی‌های پررنگ نشان داده شده است. اوربیتال‌های $3p$ و $3s$ آلومینیوم بالای تراز فرمی با منحنی‌های پر رنگ نشان داده شده است. بررسی ساختار نواری دارای اهمیت اساسی است زیرا بسیاری از خواص ماکروسکوپی از قبیل ثابت عایق، سختی و غیره را می‌توان از نتایج به دست آمده در زمینه ساختار نواری و انرژی گاف نتیجه گرفت. در جدول ۱ مقایسه بین این روش و روش‌های دیگر آمده است. مشاهده می‌شود در این روش

با 0.1eV نتایج ساختار نواری به دلیل گستردگی گاوسی حالت‌های انرژی ذاتی در روش محاسبات چگالی حالت‌ها است که موجب می‌شود تا لبه‌های نوار چگالی حالت‌ها به اندازه 0.1eV به طرف گاف نوار کشیده شوند.

با استفاده از نتایج به دست آمده، سهم چگالی حالت‌های مربوط به اتم اکسیژن در نوار ظرفیت چندین برابر بیشتر از اتم آلومینیوم است.

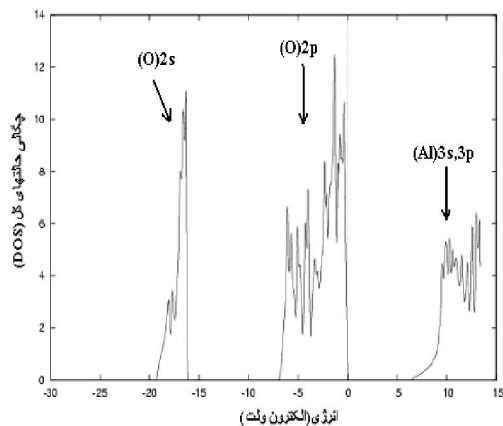
از نمودار چگالی حالت‌های جزئی اتم اکسیژن چنین نتیجه می‌شود که حالت‌های $2p$ اتم اکسیژن بالاترین لبه نوار ظرفیت را از 0 تا $5/7$ الکترون ولت و حالت‌های $2s$ آن پایین‌ترین لبه نوار ظرفیت را از 16 تا 19 الکترون ولت تشکیل می‌دهند (شکل ۶).

با توجه به اینکه حالت‌های جزئی $3s$ و $3p$ اتم آلومینیوم در نوار رسانش تشکیل می‌شوند، سهم هر یک از این حالت‌ها در شکل ۷ نشان داده شده است.

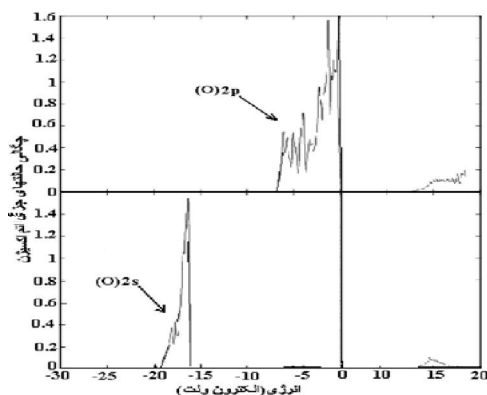
با استفاده از روش‌های تجربی، مقدار انرژی گاف برابر $E_g = 1.7\text{eV}$ به دست آمده است. البته مقایسه انرژی گاف به دست آمده $E_g = 6.3\text{eV}$ با دیگر روش‌های تئوری که در جدول ۱ آورده شده است، رضایت‌بخش است.

۴- نتیجه‌گیری

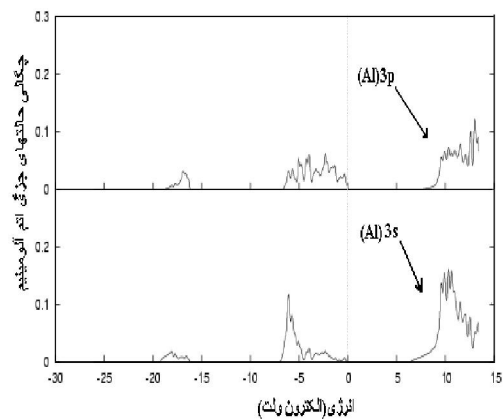
در این مقاله ساختار نواری و چگالی حالت‌ها در α - Al_2O_3 محاسبه شد. نتایج ساختار نواری و چگالی حالت‌های به دست آمده نشان می‌دهد که α - Al_2O_3 یک گاف نواری مستقیم در نقطه Γ به اندازه 6.3eV دارد که با دیگر روش‌های موجود در جدول ۱ رضایت‌بخش است. همچنین این نتایج نشان می‌دهد که بیشترین سهم در نوار ظرفیت مربوط به اربیتال‌های $2s$ و $2p$ اتم اکسیژن و در نوار رسانش مربوط به اربیتال‌های $3s$ و $3p$ اتم آلومینیوم می‌باشد. بسیاری از خواص



شکل ۵. چگالی حالت‌های کل α - Al_2O_3 .



شکل ۶. چگالی حالت‌های جزئی اتم اکسیژن.



شکل ۷. حالت‌های جزئی $3s$ و $3p$ اتم آلومینیوم در نوار رسانش.

دست می‌آید (شکل ۵). این اختلاف در انرژی گاف به اندازه

ماکروسکوپی $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ از قبیل ثابت عایق بالا و سختی بالا و غیره را می‌توان از نتایج به دست آمده در زمینه ساختار نواری و انرژی گاف نتیجه گرفت.

مراجع

1. Gusev ,E.P.,E, Carter, D.A Buchanan, M.Gribelyuk, M.Cople, H.Okorn-Schmidt, C.D,Emic, *Microelectronic Engineering* **59**, (2001),341.
2. Liao, C.C. Chin, A., Tasi, C. *Journal of crystal Growth* **201**, (1999), 652.
3. Copel, M.E .Cartier, E.P.Gusev, S.Guha, N.Bojarczuk and M.Poppeler, *Appl.phys.Lett* **78**, (2001), 2670.
4. Ludeke .R. Cuberes. M. T, Cartier. E., *Appl.Phys.Lett* **76**, (2001),2886.
5. Tews.W, Gundler.R, *Phys.State.Stat.Sol.* **109**, (1982) 255-264.
6. Perdew., J.P. Chevary, JA,S.H.Vosko, K.A.Jackson, M.R.Pederson, D.J,Singh and Fiolhaisv ,*Phys.Rev.B* **46**, (1992), 6671-6687.
7. Blaha ,P. Schwarz ,K., “WIEN2k,*Vienna university of Technology*“,Austria 2006.
8. Bagayoko. D, Zhao..GL.Fan ,J.D, and JT.Wang ,*J.Phys.Condens.Matter* **10**,(1998),5645-5655.
9. Michel-Calendini ,F.M. and Mesnard .G , *J.Phys.C:solid state physics* **6**,(1973),1709.
10. Oleinik.I.I, tsymbal, E.Yu and Pettifor, D.G. *Physical Rev B* **62**,(2000) 3952-3959.
11. Haverty M,Kawamoto.A,and Dutton, R, *Appl. Phys. Lett* **80**, (2002) 2669-2671.
12. Lucovesky. G, and Rayner. G.B, *Appl. Phys.* **83**, (2000) 2642.
13. Yourdshahyan.Y,C. Ruberto, and Lundqvist .B, *J. Am. Ceram. Soc* **82**(1999) 1365.