

بررسی ویژگی‌های ساختاری، الکترونی و اپتیکی کالکوژنیدهای استرانسیوم با روش شبه‌پتانسیل

حمدااله صالحی⁺، مژده بهروزی نژاد، یاسر حاجتی

گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه شهید چمران اهواز، اهواز، ایران

چکیده: در این مطالعه، ویژگی‌های ساختاری، الکترونی و اپتیکی کالکوژنیدهای استرانسیوم با روش شبه‌پتانسیل در چارچوب نظریه تابعی چگالی و کد کوانتوم اسپرسو بررسی شده است. محاسبات با تقریب‌های HSE و GGA ، LDA انجام شد. پارامترهای ساختاری محاسبه شده با داده‌های تجربی و نظری موجود به طور کامل مطابقت دارد. نتیجه‌های به دست آمده از ساختار نواری نشان می‌دهد که این ترکیب‌های در فاز BI نیم‌رساناهایی با گاف نواری غیرمستقیم هستند. گاف نواری محاسبه شده برای ترکیب‌های در فاز BI در تقریب‌های LDA و GGA با داده‌های نظری دیگران سازگار است. همچنین گاف نواری در تقریب HSE برای ترکیب‌های $SrTe$ و $SrSe$ ، SrS به ترتیب 4.30 ، 3.86 و 2.96 الکترون‌ولت محاسبه شد، که با داده‌های تجربی مطابقت دارد. ثابت دی‌الکتریک برای ترکیب‌ها $SrTe$ و $SrSe$ ، SrS به ترتیب 4.73 ، 5.02 و 5.86 در تقریب GGA و 5.27 ، 5.48 و 6.50 در تقریب LDA محاسبه شد و این نتیجه‌ها نیز با داده‌های تجربی و نظری موجود مطابقت دارند.

واژه‌های کلیدی: نظریه تابعی چگالی، شبه‌پتانسیل، کوانتوم اسپرسو، کالکوژنیدهای استرانسیوم، ساختار نواری.

KEYWORDS: Density functional theory; Pseudopotential; Quantum espresso; Strontium chalcogenides; Band structure.

مقدمه

برای ترکیب‌های $SrTe$ ، $SrSe$ ، SrS به ترتیب 18 ، 14 و 12 گیگا پاسکال گزارش شده است [۵-۷]. گاف نواری این ترکیب‌ها با افزایش فشار کاهش می‌یابد، تا جایی که نوار رسانش و ظرفیت هم‌پوشانی کرده و این ترکیب‌ها فلزی می‌شوند [۸].

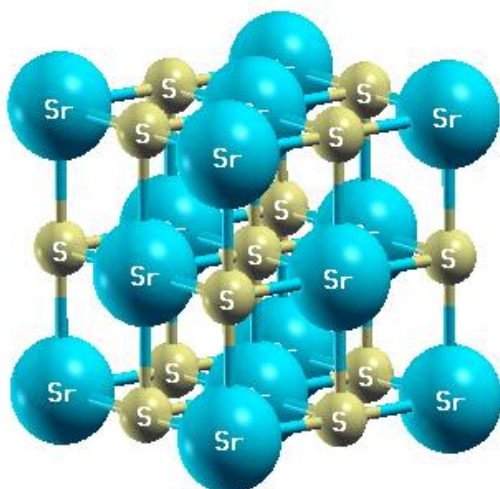
استیانیاک^۲ و همکاران در سال ۱۹۸۹ میلادی در بررسی‌های نظری ویژگی‌های الکترونی و اپتیکی ترکیب SrS را با روش $LAPW$ در قالب نظریه تابعی چگالی محاسبه کردند [۹]. بانو^۴ و همکاران در

کالکوژنیدهای استرانسیوم SrX ($X=S, Se, Te$) به دلیل ویژگی‌های خاص خود و کاربردهای بسیار از لحاظ تجربی و نظری مورد توجه هستند. این ترکیب‌ها از جمله در زمینه دستگاه‌های لومینسنت، دوزی‌متری تابش و دستگاه‌های حساس فرسرخ کاربرد دارند [۱-۳]. این ترکیب‌ها نیم‌رساناهایی با گاف نواری غیرمستقیم و بزرگ هستند که در شرایط محیطی در ساختار $B1(NaCl)$ متبلور می‌شوند [۴] و با افزایش فشار یک گذار فاز ساختاری مرتبه اول به ساختار $B2(CsCl)$ دارند. فشار گذار

* عهده‌دار مکاتبات

+ E-mail: salehi_h@scu.ac.ir

(۱) Metallization



شکل ۱- ساختار بلوری ترکیب SrS.

تابع موج، تابع موج برای ترکیب ها SrS، SrSe و SrTe در تقریب GGA به ترتیب ۵۰، ۴۰ و ۵۰ ریدبرگ و در تقریب LDA برای هر سه ترکیب ۵۰ ریدبرگ در نظر گرفته شد.

نتیجه‌ها و بحث

ویژگی‌های ساختاری و پایداری کالکوزنیدهای استرانسیوم

یکی از پارامترهای مهم در شبیه‌سازی ساختار بلوری و بررسی ویژگی‌های ترکیب‌ها مورد نظر، ثابت شبکه است. ثابت شبکه تعادلی زمانی به دست می‌آید که شبکه در پایین‌ترین حالت انرژی خود باشد. برای بررسی ویژگی‌های ساختاری از جمله ثابت شبکه، انرژی کل در حجم‌های مختلف سلول واحد محاسبه و با معادله حالت مورناگون برازش می‌شوند [۱۸]. مدول حجمی نیز معیاری از سختی بلور است و به بیان دیگر انرژی لازم برای ایجاد یک تغییر شکل معین در سامانه است. مدول حجمی عکس تراکم‌پذیری است و هر چه مقدار آن بیش‌تر باشد، بلور سخت‌تر و تراکم‌پذیری آن کم‌تر است. برای نمونه، نمودار بهینه‌سازی ثابت شبکه برای ترکیب SrS در شکل ۲ آمده است. همچنین، در جدول ۱ مقادیر محاسبه شده برای ثابت شبکه، مدول حجمی، مشتق مدول حجمی و تراکم‌پذیری برای کالکوزنیدهای استرانسیوم در فاز B1 در تقریب‌های LDA و GGA همراه با نتیجه‌های دیگران آورده شده است.

سال ۱۹۹۸ میلادی ویژگی‌های ساختاری و الکترونی ترکیب‌های دوتایی کالکوزنیدهای استرانسیوم را با روش TB-LMTO^۱ محاسبه کردند [۱۰]. مارینلی^۱ و همکاران نیز در سال ۲۰۰۰ میلادی ثابت‌های کشسانی و ساختار الکترونی ترکیب SrSe را با کد محاسباتی کریستال بررسی کردند [۱۱].

در یک بررسی دیگر، خناتا^۲ و همکاران در سال ۲۰۰۳ میلادی ویژگی‌های ساختاری، الکترونی و کشسانی ترکیب‌های دوتایی کالکوزنیدهای استرانسیوم را با روش امواج تخت بهبود یافته خطی با پتانسیل کامل و کد Wien97 محاسبه نمودند [۱۲]. راشد^۳ و همکاران در سال ۲۰۰۴ میلادی ویژگی‌های الکترونی و ساختاری این ترکیب‌ها را با روش FP-LMTO^۴ و کد محاسباتی Lmtart بررسی کردند [۱۳]. همچنین در سال ۲۰۰۶ میلادی ویژگی‌های الکترونی کالکوزنیدهای دوتایی استرانسیوم توسط دادستانی و پورقازی با روش FP-LAPW^۵ و کد Wien2k بررسی شد [۱۴]. در سال ۲۰۰۹ میلادی ویژگی‌های فونونی ترکیب SrS با روش شبه‌پتانسیل در چارچوب نظریه تابعی چگالی و کد کوانتوم اسپرسو توسط آگار^۶ مورد محاسبه قرار گرفت [۱۵]. در سال ۲۰۱۱ میلادی نیز سوادکیا^۷ و همکاران ویژگی‌های ارتعاشی و ترمودینامیکی این ترکیب‌ها را با روش شبه‌پتانسیل و کد Abinit محاسبه کردند [۱۶].

در این مطالعه ویژگی‌های ساختاری، الکترونی و اپتیکی این ترکیب‌ها مورد بررسی بیش‌تر قرار گرفت. در شکل ۱ ساختار بلوری ترکیب SrS به عنوان نمونه آمده است.

بخش نظری

روش محاسبه‌ها

محاسبه‌ها در چارچوب نظریه تابعی چگالی (DFT) و استفاده از تابع‌های موج تخت (PW) و شبه‌پتانسیل (PP) در بسته محاسباتی کوانتوم اسپرسو انجام شد [۱۷]. در این بسته محاسباتی معادله‌های کوهن - شم به روش خودسازگار حل شده و ویژه مقارها و ویژه تابع‌های همگرا شده به دست می‌آیند. تقریب‌های چگالی موضعی (LDA)، شیب تعمیم یافته (GGA) و نیز تابعی HSE برای انرژی تبادل - همبستگی به کار گرفته شدند. در این محاسبه‌ها، همگرایی بر مبنای انرژی قرار داده شد که با دقت 10^{-7} ریدبرگ به همگرایی رسیدیم. شبه‌پتانسیل‌های مورد استفاده در این بررسی از نوع بار پایسته بودند. همچنین نخست همه پارامترهای به کار رفته شامل انرژی قطع تابع موج، تعداد نقطه‌های شبکه وارون و نیز ثابت‌های شبکه بهینه شدند.

(۱) Tight binding linear muffin-tin orbital

(۳) Khenata

(۵) Fullpotentiallinearmuffintinorbitals

(۷) Ugur

(۲) Marinelli

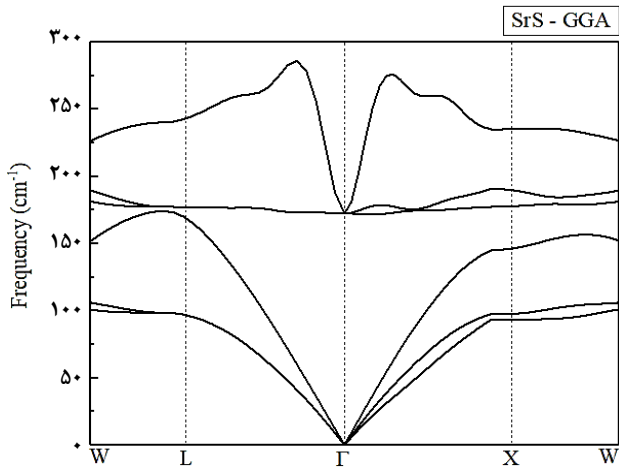
(۴) Rached

(۶) Full potential linearized augmented plane wave

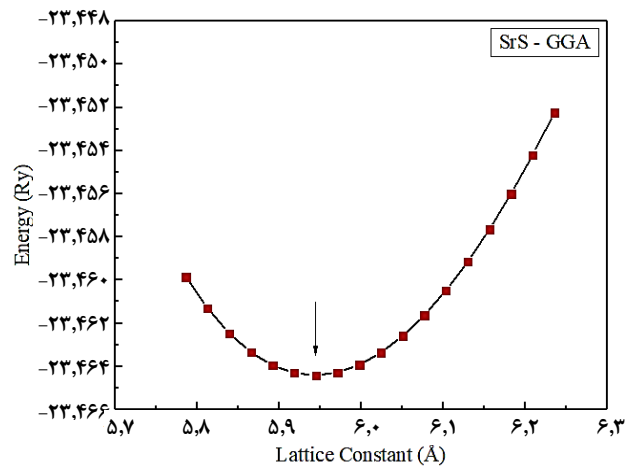
(۸) Souadkia

جدول ۱- پارامترهای ساختاری کالکوژنیدهای استرانسیوم در فاز B1 محاسبه شده در کار حاضر به همراه نتیجه‌های دیگران.

نام ترکیب	کمیت محاسبه شده	کار حاضر (LDA)	کار حاضر (GGA)	نظری	تجربی
SrS	$a_0(\text{Å})$	۵٫۷۸	۵٫۹۴	۶٫۰۵ [۱۶]، ۵٫۹۷۶ [۲۰]	۶٫۰۲۴ [۵]
	B(GPa)	۶۵٫۵	۵۴٫۷	۴۸٫۳۰ [۱۶]، ۵۳٫۰۴۹ [۲۰]	۵۸ [۵]
	B'	۴٫۷۲	۴٫۶۷	۴٫۲۹ [۱۶]، ۴٫۷۳۴ [۲۰]	-
	$k_v \times 10^{-3}(\text{GPa})^{-1}$	۱۵٫۲۶	۱۸٫۲۸	-	-
SrSe	$a_0(\text{Å})$	۵٫۹۹	۶٫۱۸	۶٫۲۹ [۱۶]، ۶٫۲۰۵ [۲۰]	۶٫۲۳ [۶]
	B(GPa)	۵۴٫۶	۴۵٫۳	۴۰٫۹۳ [۱۶]، ۴۴٫۹۱۱ [۲۰]	۴۵ [۶]
	B'	۴٫۴۵	۴٫۵۹	۴٫۲۰ [۱۶]، ۴٫۸۴۵ [۲۰]	۴٫۵ [۶]
	$k_v \times 10^{-3}(\text{GPa})^{-1}$	۱۸٫۳۱	۲۲٫۰۷	-	-
SrTe	$a_0(\text{Å})$	۶٫۳۹	۶٫۶۰	۶٫۷۱ [۱۶]، ۶٫۶۱۳ [۲۰]	۶٫۶۶ [۷]
	B(GPa)	۴۲٫۴	۳۴٫۷	۳۲٫۰۷ [۱۶]، ۳۴٫۵۲۱ [۲۰]	۳۹٫۵ [۷]
	B'	۴٫۲۲	۴٫۲۸	۴٫۱۹ [۱۶]، ۵٫۱۰۴ [۲۰]	۵٫۰ [۷]
	$k_v \times 10^{-3}(\text{GPa})^{-1}$	۲۳٫۵۸	۲۸٫۸۱	-	-



شکل ۳- نمودار پاشندگی فونونی در راستای نقطه‌های با تقارن بالا برای ترکیب SrS در فاز B1 در تقریب GGA.



شکل ۲- نمودار بهینه‌سازی ثابت شبکه برای ترکیب SrS در تقریب GGA

نمودار طیف پاشندگی فونونی ترکیب ها در فاز B1 در فشار صفر شامل بسامدهای مثبت می‌باشد که این موضوع نشان‌دهنده پایداری دینامیکی ترکیب‌های یادشده می‌باشد.

ویژگی‌های الکترونی کالکوژنیدهای استرانسیوم ساختار نواری

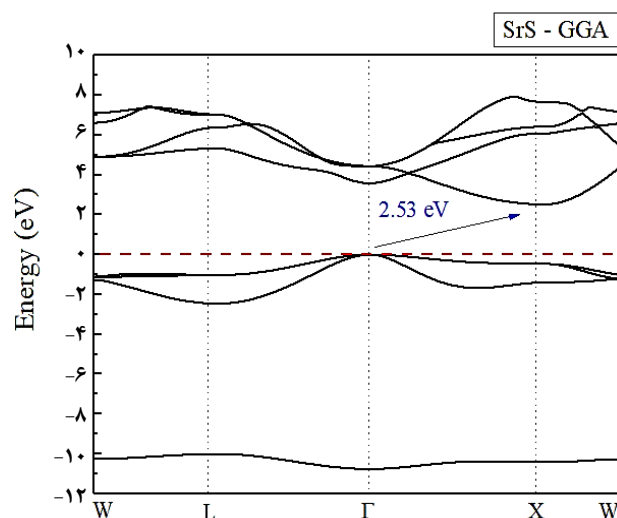
ساختار نواری یکی از موردهای مهم برای بررسی ویژگی‌های الکترونی مواد است. اهمیت محاسبه ساختار نواری در نتیجه‌های به‌دست‌آمده از آن نهفته است. با توجه به ساختار نواری می‌توان به محاسبه گاف نواری بلورها و پیش‌بینی ویژگی‌هایی مانند رسانا، نیم‌رسانا و یا عایق بودن ترکیب پرداخت و یا حتی به نوع گاف از لحاظ مستقیم یا غیرمستقیم بودن پی برد. افزون بر آن می‌توان اتم‌ها و اربیتال‌هایی را که نقش اساسی تری

با توجه به جدول ۱، نتیجه‌های کار حاضر با نتیجه‌های تجربی و نظری قبلی مطابقت دارد. با افزایش شعاع (عدد اتمی) کالکوژن، ثابت شبکه افزایش می‌یابد. به‌عنوان نمونه ثابت شبکه ترکیب SrSe بزرگ‌تر از ثابت شبکه ترکیب SrS است. مقدارهای مدول حجمی موجود در جدول ۱ بیانگر این است که این ترکیب‌ها زیاد سخت نبوده و با افزایش شعاع (عدد اتمی) کالکوژن مدول حجمی کاهش می‌یابد. همچنین، ثابت شبکه برای ترکیب‌ها SrS، SrSe و SrTe در فاز B2 به ترتیب ۳٫۶۶، ۳٫۸۲ و ۴٫۰۹ آنگستروم در تقریب GGA محاسبه شد.

در کار حاضر پایداری دینامیکی کالکوژنیدهای استرانسیوم، با محاسبه طیف پاشندگی فونونی این ترکیب‌ها بررسی شده است. به‌عنوان نمونه، در شکل ۳ نمودار طیف پاشندگی فونونی در راستای نقطه‌های با تقارن بالا برای ترکیب SrS در فاز B1 در تقریب GGA آمده است. به‌طور کلی،

جدول ۲- گاف نواری کالکوزنیدهای استرانسیوم (بر حسب الکترون ولت) در فاز B1 محاسبه شده در کار حاضر همراه با نتیجه‌های دیگران.

تجربی	نظری	کار حاضر (HSE)	کار حاضر (GGA)	کار حاضر (LDA)	نام ترکیب
۴٫۳۲ [۴]	۲٫۳۰۵ [۲۰]، ۲٫۲۵ [۱۴]، ۲٫۵۱۲ [۲۳]	۴٫۳۰	۲٫۵۳	۲٫۱۵	SrS
۳٫۸۱۳ [۴]	۱٫۹۸۲ [۲۰]، ۲٫۱۲ [۱۴]، ۲٫۲۱۶ [۲۳]	۳٫۸۶	۲٫۲۲	۱٫۸۸	SrSe
۲٫۹۰ [۱۹]	۱٫۵۷۷ [۲۰]، ۱٫۷۱ [۲۳]	۲٫۹۶	۱٫۶۹	۱٫۳۵	SrTe



شکل ۴- نمودار ساختار نواری در راستای نقاط با تقارن بالا برای ترکیب SrS در فاز B1 در تقریب GGA.

چگالی حالت‌های کلی برای کالکوزنیدهای استرانسیوم و در شکل ۶ نمودار چگالی حالت‌های جزئی برای ترکیب SrS در بازه ۱۲- تا ۱۰ الکترون‌ولت در فاز B1 در تقریب GGA آمده است. با توجه به شکل ۵ چگالی حالت‌های کلی برای ترکیب‌های یادشده است. همچنین، در قسمت گاف چگالی حالت‌ها صفر است و گاف به‌دست آمده با گاف به‌دست‌آمده از ساختار نواری در تقریب GGA مطابقت دارد.

با توجه به نمودار چگالی حالت‌های کلی برای ترکیب SrS، اولین قله در انرژی حدود ۱۰٫۳۶- الکترون‌ولت است و با توجه به نمودار چگالی حالت‌های جزئی، این قله مربوط به اربیتال ۳s اتم گوگرد می‌باشد. در واقع این حالت پایین‌ترین نوار انرژی در شکل ۴ را نشان می‌دهد. قله بعدی اربیتال ۳p اتم گوگرد را نشان می‌دهد و مربوط به سه نوار انرژی بعدی در شکل ۴ می‌باشد. بنابراین چگالی حالت‌ها زیر انرژی فرمی به طور عمده ناشی از اربیتال ۳p اتم گوگرد است. ساختار بعدی در بالای انرژی فرمی مربوط به اربیتال ۴d و ۵s اتم استرانسیوم است که تا حدود ۷٫۵ الکترون‌ولت گسترده شده و پایین‌ترین نوار در بالای سطح فرمی در شکل ۴ را نشان می‌دهد.

در گذارهای احتمالی سامانه دارند، شناسایی نمود. در این بررسی، محاسبه‌های ساختار نواری برای ۱۰۰ نقطه خاص انجام شده است. در جدول ۲ گاف نواری کالکوزنیدهای استرانسیوم محاسبه شده در فاز B1 در تقریب‌های LDA، GGA و HSE همراه با نتیجه‌های دیگران آورده شده است. با توجه به جدول ۲، گاف نواری محاسبه شده در تقریب‌های LDA و GGA با نتیجه‌های به‌دست‌آمده از کارهای نظری دیگران مطابقت دارد. همچنین، مقدارهای به‌دست‌آمده از تقریب GGA نسبت به تقریب LDA سازگاری بیش‌تری با مقادیر تجربی دارند. با این حال، گاف نواری به‌دست‌آمده از تقریب‌های LDA و GGA در قالب نظریه تابعی چگالی، اختلاف چشمگیری با داده‌های تجربی دارد. به‌طور کلی، محاسبه گاف نواری با استفاده از نظریه تابعی چگالی همواره به‌عنوان یک چالش مطرح بوده است و از سویی دیگر، توابع هیبرید از جمله تابعی HSE به‌دلیل قابلیتی که برای بهبود گاف نواری به‌خصوص در نیم‌رساناها دارند، مورد توجه هستند. با توجه به جدول ۲ گاف نواری محاسبه شده در تقریب HSE داده‌های نظری موجود را بهبود بخشیده است. نتیجه‌های محاسبات نشان می‌دهند که ساختار نواری ترکیب‌ها SrS، SrSe و SrTe همانند بوده و این ترکیب‌ها در فاز B1 دارای گاف نواری غیرمستقیم در راستای $\Gamma-X$ می‌باشند. به‌عنوان نمونه، در شکل ۴ ساختار نواری در راستای نقاط با تقارن بالا برای ترکیب SrS در بازه انرژی ۱۲- تا ۱۰ الکترون‌ولت در فاز B1 در تقریب GGA آمده است. در این شکل بیشینه نوار ظرفیت در نقطه Γ بر روی انرژی صفر قرار داده شده است. همان‌گونه که در شکل ۴ دیده می‌شود گاف نواری ترکیب SrS برابر با ۲٫۵۳ الکترون‌ولت است. همچنین، در این شکل یک تپه‌گنی سه‌گانه در نوار ظرفیت و یک تپه‌گنی دوگانه در میانه نوار رسانش دیده می‌شود.

چگالی حالت‌ها

چگالی حالت‌ها نیز یکی از کمیت‌های مهم برای بررسی ویژگی‌های الکترونی مواد به‌حساب می‌آید. چگالی حالت‌ها در واقع چگونگی توزیع الکترون‌ها در اربیتال‌های اتمی را نشان می‌دهد. در شکل ۵ نمودار

چگالی ابر الکترونی

چگالی ابر الکترونی چگونگی توزیع الکترون‌های ظرفیت و ماهیت پیوندهای شیمیایی را تعیین می‌کند. در شکل ۷ نمودار چگالی ابر الکترونی برای کالکوژنیدهای استرانسیوم در صفحه (۱۱۰) در تقریب GGA رسم شده است. با توجه به شکل ۷ چگالی بار زیاد در اطراف اتم کالکوژن دیده می‌شود. همچنین هم‌پوشانی اتم‌های استرانسیوم و کالکوژن در ناحیه میانی اتم‌ها قابل مشاهده است که این موضوع به دلیل به اشتراک گذاشتن الکترون‌ها و پیوند کووالانسی میان اتم‌ها می‌باشد. طبق مقیاس الکترونگاتیوی ارائه شده توسط پاولینگ، هر چه اختلاف الکترونگاتیوی بین دو عنصر کمتر باشد (صفر تا ۱/۷)، پیوند بیش‌تر از نوع کووالانسی است و اگر این اختلاف بزرگ باشد (۱/۷ تا ۳/۳)، پیوند یونی است.

ویژگی‌های اپتیکی کالکوژنیدهای استرانسیوم

تابع دی‌الکتریک و ضریب شکست

ویژگی‌های اپتیکی یک ماده و در واقع برهم‌کنش نور با ماده، با توجه به تابع دی‌الکتریک توصیف می‌شود. تابع دی‌الکتریک تابع پاسخ است و با استفاده از آن سایر ویژگی‌های اپتیکی از جمله ضریب شکست، ضریب جذب و ضریب خاموشی به دست می‌آید. با توجه به رابطه (۱) تابع دی‌الکتریک را می‌توان به صورت

یک سهم حقیقی و یک سهم موهومی نوشت [۲۱]:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega) \quad (1)$$

سهم موهومی با توجه به رابطه زیر تعیین می‌شود [۲۱]:

$$\varepsilon_2(\omega) = \left(\frac{4\pi^2 e^2}{m^2 \omega^2} \right) \times \quad (2)$$

$$\sum_j \left[| \langle i | M | j \rangle |^2 f_j (1 - f_j) \times \delta(E_j - E_i - \omega) d^3 k \right]$$

سهم حقیقی را می‌توان با توجه به سهم موهومی و با استفاده

از رابطه‌های کرامرز - کرونیگ تعیین کرد [۲۱]:

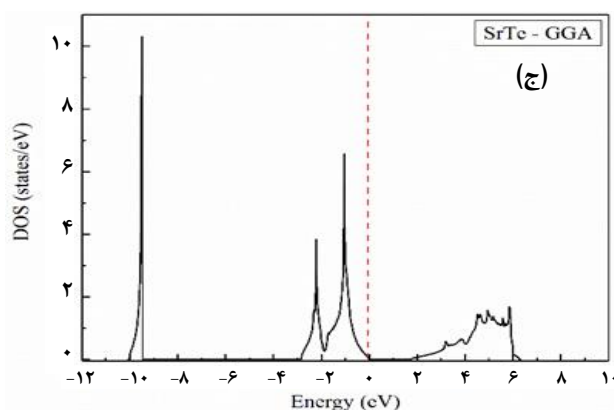
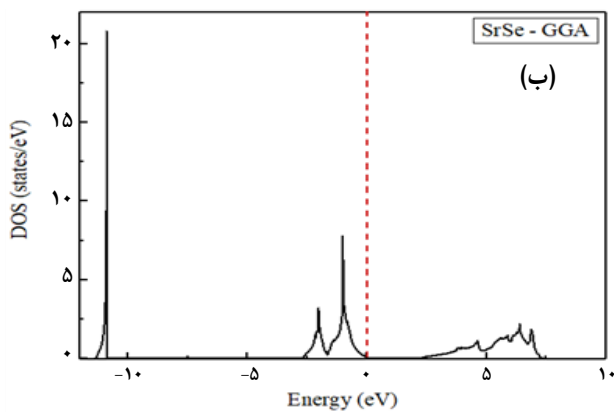
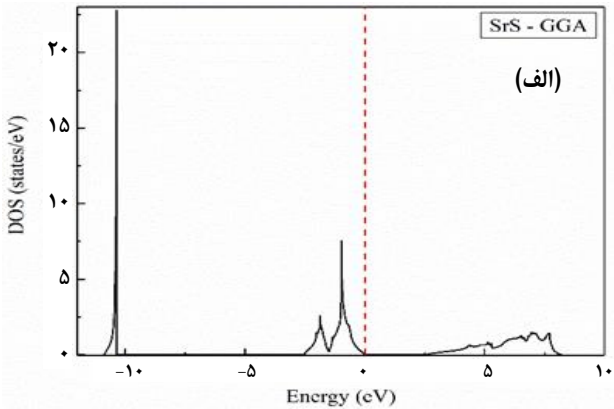
$$\varepsilon_1(\omega) = 1 + \frac{2}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{\omega' \varepsilon_2(\omega') d\omega'}{(\omega'^2 - \omega^2)} \quad (3)$$

ضریب شکست به صورت رابطه (۴) استخراج می‌شود. حد بسامد

صفر سهم حقیقی تابع دی‌الکتریک، از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است. مطابق رابطه (۵)، جذر $\varepsilon_1(0)$ ضریب شکست استاتیک را نتیجه می‌دهد [۲۱].

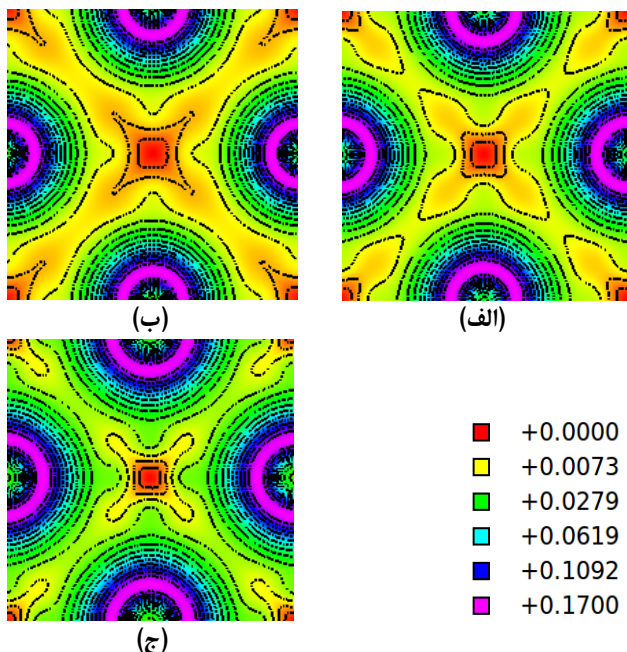
$$n(\omega) = \left[\frac{\sqrt{\varepsilon_1^2(\omega) + \varepsilon_2^2(\omega)} + \varepsilon_1(\omega)}{2} \right]^{1/2} \quad (4)$$

$$n = \sqrt{\varepsilon_1(0)} \quad (5)$$



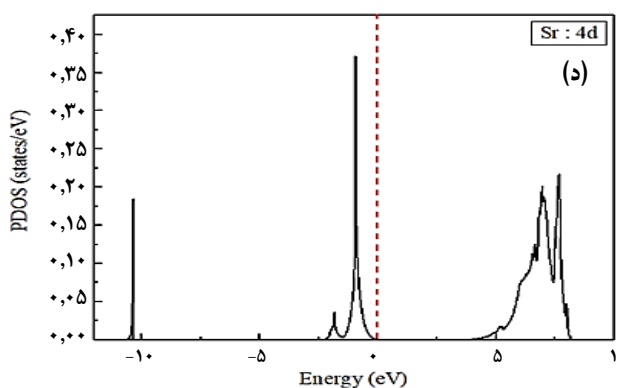
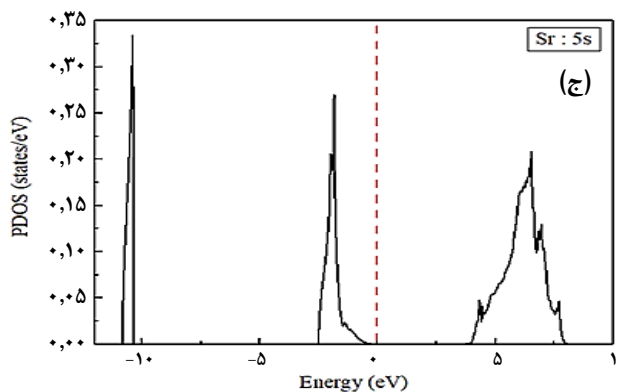
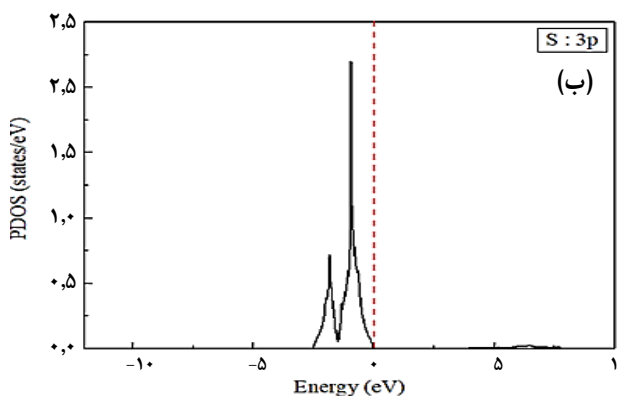
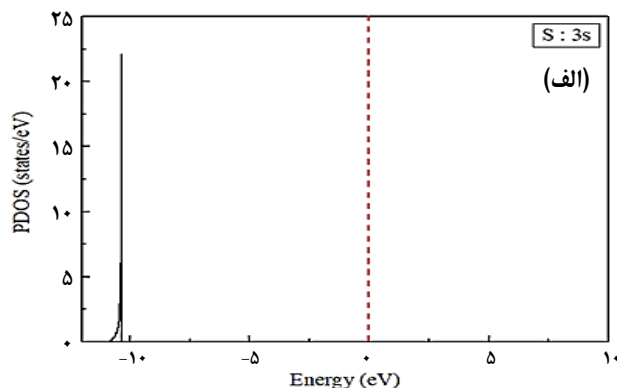
شکل ۵ - نمودار چگالی حالت‌های کلی برای ترکیب‌ها (الف) SrS، (ب) SrSe و (ج) SrTe در فاز B1 در تقریب GGA.

در جدول ۳ ثابت دی‌الکتریک و ضریب شکست استاتیک برای کالکوژنیدهای استرانسیوم در تقریب‌های LDA و GGA همراه با نتیجه‌های دیگران آورده شده است. با توجه به جدول ۳، مقدارهای محاسبه شده در کار حاضر برای ثابت دی‌الکتریک و ضریب شکست استاتیک با مقدارهای نظری و تجربی قبلی مطابقت دارد. در شکل ۸ نمودار سهم حقیقی و موهومی تابع دی‌الکتریک برای کالکوژنیدهای استرانسیوم در بازه صفر تا ۳۰ الکترون‌ولت در تقریب GGA آورده شده است.



شکل ۷- نمودار چگالی ابر الکترونی برای ترکیب‌ها (الف) SrS، (ب) SrSe و (ج) SrTe در صفحه (۱۱۰) در فاز B1 در تقریب GGA

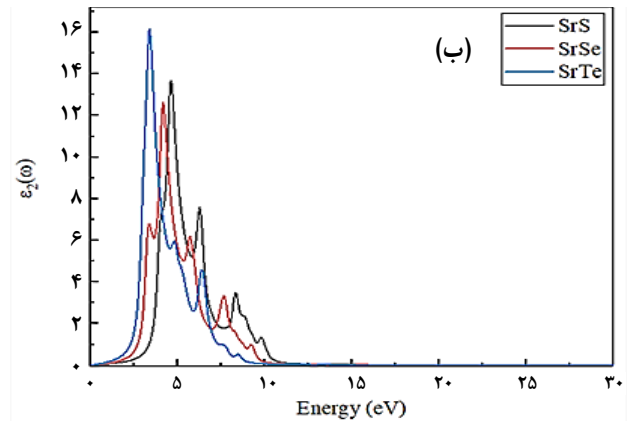
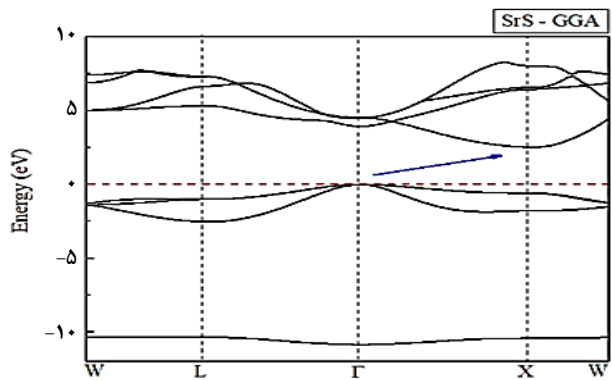
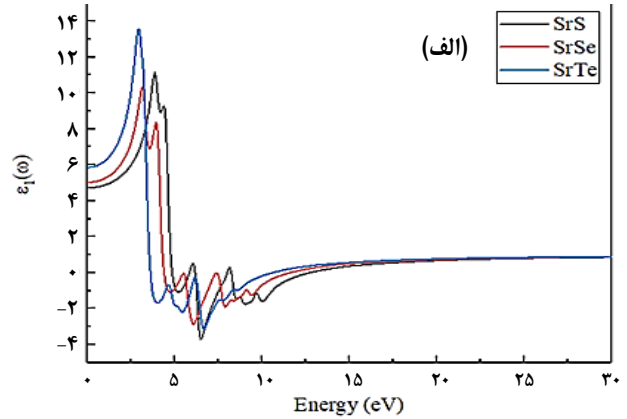
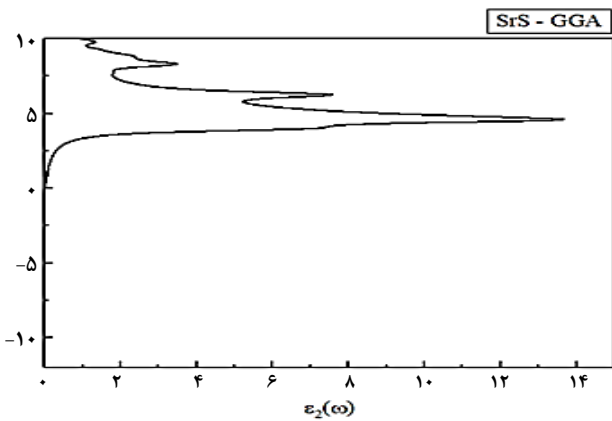
با توجه به شکل ۸ الف، نمودار سهم حقیقی تابع دی‌الکتریک برای هر سه ترکیب همانند است. برای تابع $\epsilon_1(\omega)$ ، قله اصلی در انرژی‌های ۳/۸۴، ۳/۱۲ و ۲/۹۴ الکترون‌ولت به ترتیب برای ترکیب‌ها SrSe، SrS و SrTe دیده می‌شود، پس از آن تابع با شیب منفی کاهش می‌یابد و به ترتیب در ۶/۵، ۶/۰۷ و ۵/۴۱ الکترون‌ولت کمینه می‌شود. سپس از منفی به مثبت تغییر علامت می‌دهد و سرانجام هموار می‌شود. در ناحیه‌ای که $\epsilon_1(\omega)$ منفی است، موج‌ها منتشر نمی‌شوند و فرآیندهای جذب و اتلاف صورت می‌گیرد. با توجه به سهم موهومی تابع دی‌الکتریک در شکل ۸ ب، شروع جذب از انرژی در حدود ۲/۵ الکترون‌ولت است که با گاف نواری به دست آمده برای این ترکیب‌ها در تقریب GGA مطابقت دارد. همچنین اولین قله‌ها در انرژی‌های ۴/۶۳، ۴/۱۴ و ۳/۳۶ الکترون‌ولت به ترتیب برای ترکیب‌ها SrSe، SrS و SrTe می‌باشد. با توجه به این شکل سهم موهومی تا پیش از انرژی ۲/۵ الکترون‌ولت دارای تغییری آرام است که ناشی از جذب فوتون‌های کم انرژی است و منجر به گذارهای درون‌نواری می‌شوند ولی پس از انرژی ۲/۵ الکترون‌ولت سهم موهومی به صورت ناگهانی افزایش می‌یابد که این امر بیانگر جذبی است که به دنبال آن گذارهای بین‌نواری رخ می‌دهد. شکل ۹ نمودار سهم موهومی تابع دی‌الکتریک در کنار ساختار نواری برای ترکیب SrS را نشان می‌دهد. با توجه به این شکل اولین قله به دلیل گذار از نوار ظرفیت به رسانش، بین حالت‌های ۳p اتم کالکوژن و ۴d و ۵s اتم استرانسیوم در نقطه



شکل ۶- نمودار چگالی حالت‌های جزئی برای ترکیب SrS، (الف) اربیتال ۳s گوگرد، (ب) اربیتال ۳p گوگرد، (ج) اربیتال ۵s استرانسیوم و (د) اربیتال ۴d استرانسیوم در فاز B1 در تقریب GGA.

جدول ۳- ثابت دی‌الکتریک و ضریب شکست استاتیک کالکوزنیدهای استرانسیوم در فاز B1 محاسبه شده در کار حاضر همراه با نتیجه‌های دیگران.

نام ترکیب	کمیت	کارحاضر (LDA)	کارحاضر (GGA)	نظری	تجربی
SrS	$\epsilon_1(0)$	۵٫۲۷	۴٫۷۳	۵٫۲۰ [۱۴] ، ۴٫۰۷۸ [۲۰]	۴٫۰۹ [۲۲]
	$n(0)$	۲٫۲۹	۲٫۱۷	۲٫۰۲ [۲۱]	-
SrSe	$\epsilon_1(0)$	۵٫۴۸	۵٫۰۲	۵٫۴۶ [۱۴] ، ۴٫۵۷۱ [۲۰]	۴٫۳۳ [۲۲]
	$n(0)$	۲٫۳۴	۲٫۲۴	۲٫۱۳۸ [۲۱]	-
SrTe	$\epsilon_1(0)$	۶٫۵۰	۵٫۸۶	۶٫۳۲ [۱۴] ، ۵٫۳۷۶ [۲۰]	۴٫۹۱ [۲۲]
	$n(0)$	۲٫۵۵	۲٫۴۲	۲٫۳۰۹ [۲۱]	-



شکل ۸- نمودار (الف) سهم حقیقی و (ب) سهم موهومی تابع دی‌الکتریک برای کالکوزنیدهای استرانسیوم در فاز B1 در تقریب GGA.

شکل ۹- نمودار سهم موهومی تابع دی‌الکتریک در کنار ساختار نواری برای ترکیب SrS.

$$k(\omega) = \left[\frac{\sqrt{\epsilon_1^2(\omega) + \epsilon_2^2(\omega)}}{2} - \frac{\epsilon_1(\omega)}{2} \right]^{1/2} \quad (۶)$$

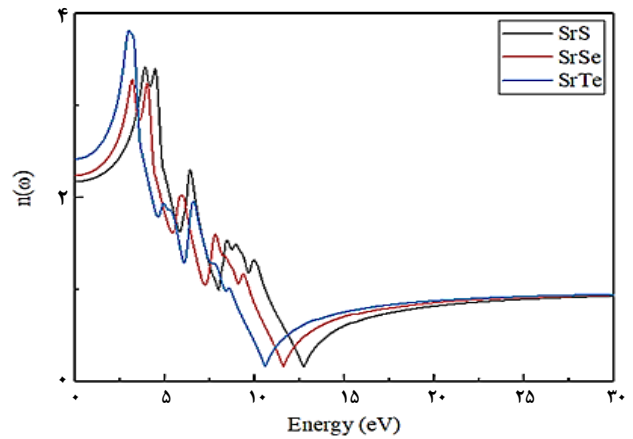
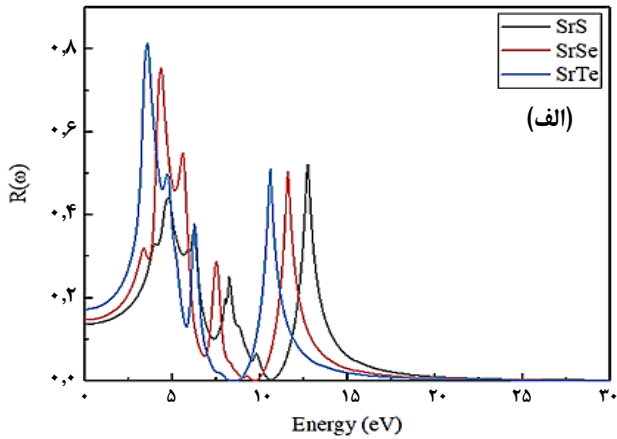
ضریب بازتاب نیز یکی دیگر از پارامترهای مهم اپتیکی است که انرژی انعکاس یافته از قسمت فصل مشترک جامد را توصیف می‌کند و با رابطه (۷) داده می‌شود [۲۱]:

$$R(\omega) = \left| \frac{1 - \sqrt{\epsilon}}{1 + \sqrt{\epsilon}} \right|^2 = \frac{(1-n)^2 + k^2}{(1+n)^2 + k^2} \quad (۷)$$

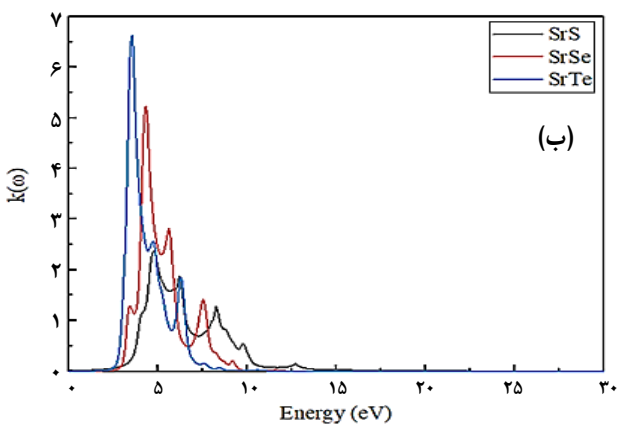
تقارنی Γ است. همچنین، در شکل ۱۰ نمودار ضریب شکست این ترکیب‌ها در بازه انرژی صفر تا ۳۰ الکترون‌ولت در تقریب GGA نشان داده شده است.

ضریب خاموشی و ضریب بازتاب

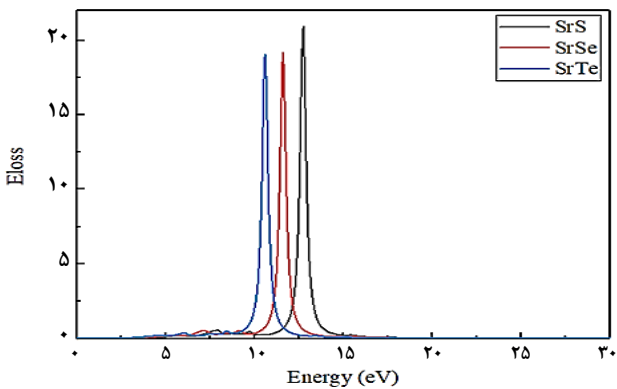
ضریب خاموشی برای یک ماده سنجشی از میزان جذب پرتو الکترومغناطیسی توسط آن ماده است. رابطه ضریب خاموشی همانند با ضریب شکست و به شکل معادله (۶) می‌باشد [۲۱]:



شکل ۱۰- نمودار ضریب شکست برای کالکوژنیدهای استرانسیوم در فاز B1 در تقریب GGA.



شکل ۱۱- نمودار (الف) ضریب خاموشی و (ب) ضریب بازتاب برای کالکوژنیدهای استرانسیوم در فاز B1 در تقریب GGA.



شکل ۱۲- نمودار طیف اتلاف برای کالکوژنیدهای استرانسیوم در فاز B1 در تقریب GGA.

در شکل ۱۱ نمودار ضریب خاموشی و ضریب بازتاب برای کالکوژنیدهای استرانسیوم در بازه انرژی صفر تا ۳۰ الکترون‌ولت در تقریب GGA آمده است. اگر ضریب خاموشی در یک بلور پایین باشد موج الکترومغناطیس به آسانی از آن عبور می‌کند، همان‌گونه که در شکل ۱۱ الف نشان داده شده است تا انرژی‌هایی در بازه گاف نواری که هنوز گذار الکترون‌ها آغاز نشده است، موج الکترومغناطیسی قادر به عبور آسان‌تر از درون ترکیب است ولی با افزایش انرژی فوتون‌های فرودی، رفته‌رفته گذار آغاز می‌شود و عبور موج به‌سادگی قبل از آن نخواهد بود که این امر با افزایش ضریب خاموشی همراه است. در پایان پس از انجام گذارهای اولیه تا انرژی‌های حدوداً ۲/۵، ۵ و ۶/۵ الکترون‌ولت به ترتیب برای ترکیب‌ها SrS، SrSe و SrTe ضریب خاموشی کاهش می‌یابد. ضریب بازتاب وابسته به انرژی فوتون فرودی است. کمینه نمودار بازتابندگی بیانگر بیش‌ترین مقدار جذب است. بر همین اساس با توجه به شکل ۱۱ ب، یکی از تأثیرگذارترین کمینه‌های نمودار بازتابندگی در انرژی حدود ۶/۵ الکترون‌ولت برای SrSe رخ می‌دهد؛ بنابراین در این انرژی خاص جذب مقدار بیشینه‌ای خواهد داشت. این مقدار انرژی بر طبق نتیجه‌های به‌دست‌آمده از سهم حقیقی تابع دی‌الکتریک، برابر با میزان انرژی فوتون‌های فرودی است که به ازای آن دوباره موج الکترومغناطیسی در ترکیب انتشار می‌یابد و با بیش‌ترین میزان جذب روبه‌رو می‌شود.

تابع اتلاف

تابع اتلاف، معکوس سهم موهومی تابع دی‌الکتریک است. در شکل ۱۲ نمودار تابع اتلاف کالکوژنیدهای استرانسیوم در بازه انرژی صفر تا ۳۰ الکترون‌ولت در تقریب GGA آمده است. بلندترین قله در طیف اتلاف، قله پلاسما و فرکانس منطبق با آن بسامد پلاسما

نامیده می‌شود. طبق محاسبات صورت گرفته در تقریب GGA بیشینه تابع اتلاف برای ترکیب‌ها SrS، SrSe و SrTe به ترتیب در انرژی‌های ۱۲/۷۴، ۱۱/۶۰ و ۱۰/۵۸ الکترون‌ولت قرار دارد و مطابق با قله پلاسما می‌باشد. در واقع این قله نشان‌دهنده تحریک دسته جمعی الکترون‌های نوار ظرفیت به نوار رسانش می‌باشد.

نتیجه‌گیری

در این بررسی، ویژگی‌های ساختاری، الکترونی و اپتیکی کالکوژنیدهای استرانسیوم مورد مطالعه قرار گرفت. محاسبه‌های بر مبنای نظریه تابعی چگالی، با روش شبه‌پتانسیل و تقریب‌های GGA، LDA و HSE و با استفاده از کد کوانتوم اسپرسو انجام شد. پارامترهای ساختاری محاسبه شده با مقادیرهای تجربی و نظری دیگران سازگاری خوبی دارند. در فاز B1 گاف نواری ترکیب‌ها SrTe و SrSe، SrS به ترتیب ۰.۴۳، ۰.۳۸۶ و ۰.۲۹۶ الکترون‌ولت در تقریب HSE محاسبه شد. این مقادیر از دقت خوبی نسبت به مقدار تجربی برخوردارند و نتیجه‌های به دست آمده از تقریب‌های LDA و GGA را بهبود بخشیده‌اند. همچنین، محاسبه‌های ساختار نواری در این فاز نشان‌دهنده گاف نواری غیرمستقیم و بزرگ

مراجع

- [1] Pandey R., Sivaraman S., [Spectroscopic Properties of Defects in Alkaline-Earth Sulfides](#), *J. Phys. Chem. Solids*, **52**: 211-225 (1991).
- [2] Nakanishi Y., Ito T., Hatanaka Y., Shimaoka G., [Preparation and Luminescent Properties of SrSe: Ce Thin Films](#), *Appl. Surf. Sci.*, **65**: 515-519 (1993).
- [3] Asano S., Yamashita N., Nakao Y., [Luminescence of the Pb²⁺-Ion Dimer Center in Cas and Case Phosphors](#), *Phys. Status Solidi (b)*, **89**: 663-673 (1978).
- [4] Kaneko Y., Koda T., [New Developments in Iia-Vib \(Alkaline-Earth Chalcogenide\) Binary Semiconductors](#), *J. Cryst. Growth*, **86**: 72-78 (1988).
- [5] Syassen K., [Pressure-Induced Structural Transition in SrS](#), *Phys. Status Solidi (a)*, **91**: 11-15 (1985).
- [6] Luo H., Greene R.G., Ruoff A.L., [High-Pressure Phase Transformation and the Equation of State of SrSe](#), *Phys. Rev. B*, **49**: 15341-15343 (1994).
- [7] Zimmer H.G., Winzen H., Syassen K., [High-Pressure Phase Transitions in CaTe and SrTe](#), *Phys. Rev. B*, **32**: 4066-4070 (1985).
- [8] Syassen K., [Ionic Monochalcogenides under Pressure](#), *Phys. B+ C*, **139**: 277-283 (1986).
- [9] Stepanyuk V.S., Szász A., Farberovich O.V., Grigorenko A.A., Kozlov A.V., Mikhailin V.V., [An Electronic Band Structure Calculation and the Optical Properties of Alkaline-Earth Sulphides](#), *Phys. Status Solidi (b)*, **155**: 215-220 (1989).
- [10] Shameem Banu I.B., Rajagopalan M., Palanivel B., Kalpana G., Shenbagaraman P., [Structural and Electronic Properties of SrS, SrSe, and SrTe under Pressure](#), *J. Low Temp. Phys.*, **112**: 211-226 (1998).

تاریخ دریافت: ۱۳۹۸/۰۵/۰۲ ؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۸/۰۷/۲۹

- [11] Marinelli F., Dupin H., Lichanot A., [Comparison of Elastic Constants and Electronic Structures in the Series of the Alkaline-Earth Selenides: A Quantum Chemical Approach](#), *J. Phys. Chem. Solids*, **61**: 1707-1715 (2000).
- [12] Khenata R., Baltache H., Rérat M., Driz M., Sahnoun M., Bouhaf B., Abbar B., [First-Principle Study of Structural, Electronic and Elastic Properties of SrS, SrSe and SrTe under Pressure](#), *Phys. B: Condens. Matter*, **339**: 208-215 (2003).
- [13] Rached D., Rabah M., Benkhetou N., Soudini B., Abid H., [Electronic and Structural Properties of Strontium Chalcogenides SrS, SrSe and SrTe](#), *Phys. Status Solidi (b)*, **241**: 2529-2537 (2004).
- [14] Dadsetani M., Pourghazi A., [Optical Properties of Strontium Monochalcogenides from First Principles](#), *Phys. Rev. B*, **73**: 195102-7 (2006).
- [15] Uğur S., [Theoretical Study of the Phonon Properties of SrS](#), *Mater. Sci. Eng.: B*, **162**: 116-119 (2009).
- [16] Souadkia M., Bennecer B., Kalarasse F., Mellouki A., [AB Initio Calculation of Vibrational and Thermodynamic Properties of SrX \(S, Se, Te\) in the B1 \(NaCl\) and B2 \(Cscl\) Structures](#), *Comp. Mater. Sci.*, **50**: 1701-1710 (2011).
- [17] Giannozzi P., Baroni S., Bonini N., Calandra M., Car R., Cavazzoni C., Ceresoli D., Guido L C., Matteo C., Ismaila D., Andrea D., Stefano G., Stefano F., Guido F., Ralph G., Uwe G., Christos G., Anton K., Michele L., Layla M.S., Nicola M., Francesco M., Riccardo M., Stefano P., Alfredo P., Lorenzo P., Carlo S., Sandro S., Gabriele S., Scлаuzero P., Ari P.S., S. , Paolo U., Renata M.W., [Quantum Espresso: A Modular and Open-Source Software Project for Quantum Simulations of Materials](#), *J. phys.: Condens. matter*, **21**: 395502-36 (2009).
- [18] Murnaghan F.D., [The Compressibility of Media under Extreme Pressures](#), *Proc. Nat. Acad. Sci.*, **30**: 244-247 (1944).
- [19] Syassen K., Christensen N.E., Winzen H., Fischer K. Evers J., [Optical Response and Band-Structure Calculations of Alkaline-Earth Tellurides under Pressure](#), *Phys. Rev. B*, **35**: 4052-4059 (1987).
- [20] Debnath B., Sarkar U., Debbarma M., Bhattacharjee R. Chattopadhyaya S., [Tuning of Electronic Band Gaps and Optoelectronic Properties of Binary Strontium Chalcogenides by Means of Doping of Magnesium Atom \(S\)-a First Principles Based Theoretical Initiative with mBJ, B3LYP and WC-GGA Functionals](#), *Phys. B: Condens. Matter*, **530**: 53-68 (2018).
- [21] Bhattacharjee R., Chattopadhyaya S., [Effects of Doping of Calcium Atom\(s\) on Structural, Electronic and Optical Properties of Binary Strontium Chalcogenides - A Theoretical Investigation Using DFT Based FP-LAPW Methodology](#), *Solid State Sci.*, **71**: 92-110 (2017).
- [22] Lines M. E., [Bond-orbital theory of linear and Nonlinear Electronic Response in Ionic Crystals. I. Linear Response](#), *Phys. Rev. B*, **41**: 3372-3382(1990).
- [23] Salam M. M. A., [First Principles Study of Structural, Elastic and Electronic Structural Properties of Strontium Chalcogenides](#), *Chinese J. Phys.*, **57**: 418-434(2019).