

An Ab-initio Study of Self-interstitial Defect Evolution in 4H-SiC Crystal Structure

Nadia Babaei Bidmeshki*, Safieh Nazari

Physics and Accelerators School, Nuclear Science and Technology Research Institute, Atomic Energy Organization of Iran, Tehran, Iran

Received: 28.11.2023 Final revised: 14.02.2024 Accepted: 04.03.2024

Doi: [10.22055/jrmbms.2024.18982](https://doi.org/10.22055/jrmbms.2024.18982)

Abstract

Macroscopic effects of radiation damage are due to the superposition of initial damages at an atomic scale. Using ab-initio molecular dynamics, the effect of point defects on the electronic and structural properties of 4H-SiC was evaluated. According to the results, the position of the defect was the most important factor in the mentioned properties. Based on the ab-initio molecular dynamics, it was depicted that the Frenkel pair recombination occurs only if the hole and defect are close enough (about a lattice constant). It was observed that recombination will happen during 120 to 1600 femtoseconds for carbon and silicon Frenkel pairs, respectively. If recombination does not occur, trap states appear in the energy gap, which can reduce the detector's efficiency.

Keywords: Density Functional Theory, Ab-Initio Molecular Dynamics, Charge Density Distribution, Frenkel Pair, Self-interstitial Defect

*Corresponding Author: nbabaei@aeoi.org.ir

مطالعه ابتدا به ساکن تحول نقص خودبین‌نشین در ساختار بلوری 4H-SiC

نادیا بابایی بیدمشکی*، صفیه نظری

پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، تهران، ایران

دریافت: ۱۴۰۲/۰۹/۰۷ ویرایش نهائی: ۱۴۰۲/۱۱/۲۵ پذیرش: ۱۴۰۲/۱۲/۱۴

Doi: [10.22055/jrmbms.2024.18982](https://doi.org/10.22055/jrmbms.2024.18982)

چکیده

اثرات ماکروسکوپی تخریب تابشی بر مواد ناشی از برهم‌نهی تدریجی آسیب‌های اولیه در مقیاس اتمی است. در این پژوهش با استفاده از روش شبیه‌سازی دینامیک مولکولی ابتدا به ساکن، اثرات حضور نقص‌های نقطه‌ای خودبین‌نشین بر خواص الکترونی و ساختاری 4H-SiC مورد بررسی قرار گرفت. بنا بر نتایج به دست آمده، مهم‌ترین عامل در تغییر این خواص، جایگاه نقص ایجاد شده در شبکه است. یافته‌های محاسبات ابتدا به ساکن نشان داد که بازترکیب زوج فرنکل ایجاد شده در ساختار، در صورتی رخ خواهد داد که حفره و نقص به اندازه کافی به یکدیگر نزدیک بوده و حداکثر این فاصله حدود یک ثابت شبکه باشد. نتایج به دست آمده حاکی از این امر بوده است که زمان بازترکیب زوج فرنکل برای نقص اتم کربن و سیلیسیم به ترتیب در حدود ۱۲۰ و ۱۶۰۰ فمتوثانیه می‌باشد. چنانچه بازترکیب رخ ندهد، شاهد حضور ترازهای تله در گاف انرژی می‌باشیم که این موضوع می‌تواند در کاهش بازده این نوع از آشکارسازها نقش به‌سزایی داشته باشد.

کلیدواژگان: نظریه تابعی چگالی، دینامیک مولکولی ابتدا به ساکن، توزیع چگالی بار، زوج فرنکل، نقص خودبین‌نشین

مقدمه

بالاتری از حامل‌های بار می‌شود. با این حال، یکی از چالش‌های پیش رو در محیط‌های پرتودهی بالا نظیر راکتورهای هسته‌ای، آسیب‌های تابشی است که انتخاب مواد مورد استفاده در محیط را دشوار می‌کند. تغییرات ویژگی‌های مواد تحت پرتودهی نظیر تورم، سخت‌شدگی، مقاومت و شکنندگی در مراجع بسیاری مورد اشاره قرار گرفته است [۱]. آنچه در داشتن یک آشکارساز نیم‌رسانای بهینه با طول عمر مناسب مطرح می‌شود، در نظر گرفتن پدیده‌های مرتبط با تخریب تابشی است. تخریب اشاره به تغییر

از جمله مسائل موجود در حوزه آشکارسازی، ابعاد آشکارساز، قدرت تفکیک انرژی بالا و زمان مرده کم می‌باشند. استفاده از محیط آشکارسازی جامد، یکی از بهترین راهکارها به منظور پاسخگویی به نیازهای فوق است. از طرف دیگر، تنها راه کاهش محدودیت‌های آماری در قدرت تفکیک انرژی، بالا بردن تعداد حامل‌های اطلاعات در هر پالس است. استفاده از مواد نیم‌رسانا به عنوان آشکارساز، منجر به تعداد بسیار

* نویسنده مسئول: nbabaei@aeoi.org.ir

نوع p اندکی کاهش مشاهده شد. خواص الکتریکی تک بلور SiC نوع n پرتو دهی شده با نوترون با استفاده از اندازه‌گیری اثر هال^۳ بررسی شده و مشخص شد که با افزایش چگالی حامل، تحرک حامل بیشتر می‌شود.

خرسندی^۴ در سال ۲۰۰۷ به مدل‌سازی جابه‌جایی نقص‌های به‌وجود آمده در آشکارسازهای کریید سیلسیم ناشی از پرتو دهی نوترونی پرداخت [۳]. همچنین از دیگر اهداف پژوهش وی، پیش‌بینی مکان‌هایی از راکتور بود که در آن، آشکارساز SiC بتواند شار نوترون را با دقت بالایی ثبت کند. در نهایت نشان داده شد که آشکارسازهای SiC که در محدوده نوترون حرارتی یک راکتور با کندکننده-بازتابنده گرفتاری قرار می‌گیرند، می‌توانند حداقل به مدت یک چرخه سوخت‌گذاری راکتور، با دقت خوبی نرخ شمارش را ثبت کنند.

کاتو^۵ و همکاران در سال ۲۰۱۲ به بررسی اثرات تابش بر SiC در کاربردهای ساختارهای هسته‌ای پرداختند [۴]. در این پژوهش مروری بر کارهای تجربی و مدل‌سازی‌های انجام شده بر SiC انجام گرفته است. از جمله نکاتی که در این پژوهش به چشم می‌خورد، مدل‌سازی اندرکنش‌های محصولات شکافت با بلور SiC است که در سایر مطالعات مغفول مانده است. در انتها، کاربردهای احتمالی این بلور در پسماند هسته‌ای و راکتورهای گداخت پیشنهاد شده است.

کاو^۶ و همکاران در سال ۲۰۱۹ به شبیه‌سازی دینامیک مولکولی اثرات پرتو دهی بر SiC-3C و نیز SiC بی‌شکل پرداختند [۵]. همچنین آنها از روش TEM در

مکان‌ها از مکان‌های نرمال شبکه در ماده هدف دارد که در اثر برخورد پرتو رخ داده است. در اثر این جابه‌جایی، سطوح جدید انرژی در گاف انرژی نیم‌رسانا ایجاد می‌شود که منجر به تضعیف ویژگی‌های الکترونیکی و نوری ماده می‌گردد. ایجاد نقص‌های میکروسکوپی در آشکارساز منجر به تغییر ویژگی‌های ماکروسکوپی آشکارساز نظیر کاهش طول عمر بازترکیب، افزایش جریان نشت، و ایجاد ترازهای تله می‌شود. اثرات میکروسکوپی تخریب تابشی بر مواد ناشی از برهم‌نهی تدریجی آسیب‌های اولیه در مقیاس اتمی است. شکل‌گیری نقص‌های جدید و تحول آنها منجر به بروز تغییراتی در این برهم‌نهی‌ها می‌شود.

SiC دارای ویژگی‌های فیزیکی و شیمیایی است که منجر به استفاده‌های بالقوه آن در ابزارهای نیم‌رسانا، راکتورهای هسته‌ای تولید برق و صنعت پتروشیمی، به‌ویژه تحت شرایط سخت محیطی می‌گردد. سطح مقطع پایین، انرژی فعال‌سازی پایین، و رسانش حرارتی SiC تحت تابش نوترون منجر به انتخاب این ماده به‌عنوان ماده آشکارساز نیم‌رسانای مورد استفاده در راکتورها می‌کند. در سال ۲۰۰۳، کانازاوا^۱ و همکاران با استفاده از روش‌های رزونانس اسپین الکترون (ESR^۲)، جذب نوری و اندازه‌گیری خواص الکتریکی به‌بررسی اثرات پرتو بر دو نوع n و p مواد 4H-SiC و 6H-SiC پرتو دهی شده پرداختند [۲]. بر اساس مشاهدات، مدل‌های ساختاری نقص‌های به‌وجود آمده تبیین شدند. بازدهی تشکیل نقص تهی-جای در SiC نوع n، با افزایش دمای پرتو دهی افزایش یافت، در حالی که در

⁴ Khorsandi

⁵ Katoh

⁶ Cowen

¹ Kanazawa

² Electron spin resonance

³ Hall

شبیه‌سازی تابش با معرفی یک اتم سیلیسیم تصادفی با انرژی جنبشی 80 eV به‌عنوان PKA انجام شد. شبکه‌های کربن آزاد در جذب انرژی جنبشی ناشی از یون و تبدیل آن به یک جرقه حرارتی (که به‌صورت انرژی حرارتی از سامانه خارج می‌شود) بسیار مؤثر بوده و منجر به کاهش آسیب‌آبشاری می‌شود و لذا این ماده از مقاومت تابشی بالاتری نسبت به SiC برخوردار است.

در سال ۲۰۱۹، ژیانگ و همکاران به شبیه‌سازی دینامیک مولکولی ابتدا به‌ساکن اثرات تخریب تابشی برای ابرسلول^۴ GaAs/AlGaAs پرداختند [۸]. در این مطالعه پاسخ ابرسلول GaAs/AlAs به پرتوهای انرژی پایین بررسی شد و به‌منظور افزایش مقاومت در برابر تخریب تابشی، لایه Ga به AlAs افزوده شد. نتایج نشان داد که تعداد زیادی نقص در فرایند دینامیک جابه‌جایی نقص‌ها در شبکه ساخته می‌شود. این نقص‌ها در انرژی‌های پایینی تشکیل می‌شوند و سد انرژی را برای تشکیل نقص‌های بعدی افزایش می‌دهند و لذا منجر به بالاتر رفتن آستانه تحمل در برابر آسیب پرتویی می‌شوند. کاربرد این ابرسلول در ابزار الکترونیکی و نیز کاربردهای نوری است.

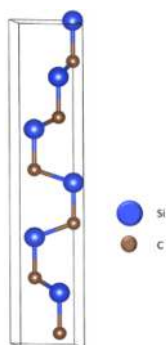
در سال ۲۰۲۱، ژانگ و همکاران به‌مطالعه پاسخ تابش الکترونی در $\text{Pu}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ پرداختند [۹]. شبیه‌سازی با استفاده از روش دینامیک مولکولی ابتدا به‌ساکن انجام شد و نحوه بی‌شکل شدن ساختار در اثر پرتودهی بررسی گردید. همچنین مطالعات دینامیک مولکولی دیگری توسط محققان گوناگون به‌منظور بررسی آسیب

محل، نتایج نظری خود را اعتبارسنجی کردند. در این آزمایش از باریکه یون Au^{3+} با انرژی 1.7 MeV استفاده شده و شبیه‌سازی‌ها نیز با آبشارهای نقص ایجاد شده با $100\text{--}10\text{ keV}$ برای اولین اتم بیرون افتاده از جایگاه اصلی شبکه (PKA^۱) انجام شد. نتایج شبیه‌سازی و تجربی تخریب تابشی را بر 3C-SiC نشان دادند ولی در SiC بی‌شکل چنین تخریبی دیده نشد.

هی^۲ و همکاران در سال ۲۰۱۹ به شبیه‌سازی نانوسیم SiC تحت تابش تک-یون پرداختند [۶]. در این مطالعه، تأثیرات رویداد تک-ذره بررسی شد که در پرتودهی‌های دز پایین و اثرات بلندمدت موضوعیت دارد. با استفاده از محاسبات دینامیک مولکولی، پاسخ ماده مورد مطالعه بر پرتودهی یون Ga مورد مطالعه قرار گرفت. نتایج نشان داد که پاسخ ماده به پرتو وابسته به قطر نانوسیم‌ها است. نقصی که در یک رویداد تک-یون ایجاد می‌شود، در سطح چند نانومتری جایگزیده شده و قطر بحرانی‌ای وجود دارد که در آن تخریب تابشی به حداقل می‌رسد.

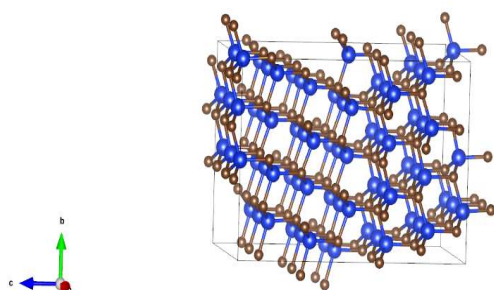
گائو^۳ و همکاران در سال ۲۰۲۱ به‌مطالعه رفتار تخریب تابشی SiOC بی‌شکل پرداختند [۷]. شبکه‌های کربن آزادی که در پلیمر بی‌شکل SiOC ایجاد می‌شود، دارای اثرات چشمگیری بر میکروساختارهای ماده و نیز ویژگی‌های عملکردی و ساختاری آن است. در این مطالعه، با استفاده از شبیه‌سازی‌های دینامیک مولکولی ابتدا به ساکن، اثرات این شبکه‌ها بر فرایند و مکانیزم تخریب پرتویی در SiOC مورد بررسی قرار گرفت.

^۳ Gao^۴ Super cell^۱ Primary Knockon Atom^۲ He



شکل ۱. نمای مقابل از سلول واحد 4H-SiC

در راستای بررسی نحوه پخش نقص‌ها در داخل شبکه، یک ابرسلول شامل ۱۴۴ اتم پایه در نظر گرفته شد (شکل ۲). نقص‌های نقطه‌ای می‌توانند از نوع خودبین‌نشینی، حفره و یا بین‌نشینی از هر کدام از اتم‌های حاضر در شبکه باشند. در این مطالعه تنها نقص‌های نوع خودبین‌نشینی مورد توجه قرار گرفتند. با توجه به این موضوع که در سلول واحد ساختار 4H-SiC دو جایگاه غیر هم‌ارز برای اتم کربن و دو جایگاه غیر هم‌ارز برای اتم سیلیسیم وجود دارد [۱۰، ۱۱]، چهار نقص خودبین‌نشینی در نظر گرفته شده و انرژی تشکیل آنها محاسبه شد. سایر محاسبات برای نقص‌های خودبین‌نشین کربن و سیلیسیم که پایداری بیشتری داشتند، انجام شد.



شکل ۲. نمای بالا از ابرسلول 4H-SiC بدون نقص.

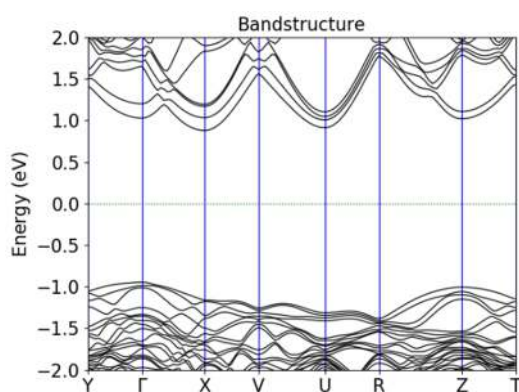
تابشی بر انواع اکسیدهای فلزی (Al_2O_3)، سرامیک‌ها (TiO_2)، و نیم‌رساناها (SiO_2) انجام گرفته که اغلب در تأسیسات راکتورهای شکافت کاربرد دارند. از آنجا که شناخت مکانیسم‌های تخریب تابشی و درک پدیده‌های مرتبط با آن نقش به‌سزایی در طراحی یک آشکارساز کارآمد خواهد داشت، در این پژوهش ساختار نیم‌رساناهای مبتنی بر سیلیسیم تحت تأثیر تابش بررسی شده است. بدین منظور، محاسبات دینامیک مولکولی ابتدا به ساکن جهت مشخصه‌یابی تخریب تابشی کریستال سیلیسیم و نحوه پخش نقص در ساختار مورد توجه قرار گرفته است.

روش محاسبات

کریستال سیلیسیم با فاز ساختاری 4H-SiC در گروه فضایی $P6_3mc$ با شماره ۱۸۹ تبلور می‌یابد. پایه اتمی این شبکه از دو اتم Si و C با سهم یکسان تشکیل شده است و در سلول واحد ۱۲ اتم پایه وجود دارد. لازم به‌ذکر است که در ساختار اصلی، ۸ اتم در سلول یکه موجودند که در این محاسبات، از سلول قراردادی راست‌گوشه با ۱۲ اتم در سلول یکه استفاده شده است. هر اتم در این شبکه در یک ساختار چهاروجهی با تشکیل پیوندهای هیبریدی از نوع sp^3 با چهار اتم از نوع مخالف تشکیل پیوند می‌دهد به عبارتی شبکه بلوری دارای تقارن از نوع ورتزیت^۱ می‌باشد. نمایه‌ای از این ساختار در شکل ۱ نشان داده شده است.

^۱ Wurtzite

در ساختار نواری آنها باعث بروز تفاوت در خواص الکتریکی‌شان می‌شود. خواص مورد توجه در کاربردهای اپتوالکترونی نظیر عمر حالت برانگیخته، مکانیزم بازترکیب، تحرک و تراکم حامل‌های بار ذاتی و بسیاری خواص دیگر را با مطالعه ساختار نواری و چگالی حالات مواد می‌توان مورد بررسی قرار داد.



شکل ۳. ساختار نواری شبکه بلوری 4H-SiC.

در شکل ۳ ساختار نواری مربوط به بلور بدون نقص 4H-SiC نمایش داده شده است. نتایج حاکی از وجود یک گاف انرژی غیرمستقیم در این شبکه بلوری می‌باشد. در واقع بالاترین سطح انرژی اشغال شده در نوار ظرفیت، در نقطه تقارنی Γ اتفاق افتاده است، در حالی که پایین‌ترین نوار انرژی پر نشده در نوار رسانش در نقطه تقارنی X واقع شده است. این مسئله که در این ساختار گاف انرژی به صورت غیرمستقیم اتفاق افتاده، می‌تواند کاملاً نوید بخش باشد، چرا که احتمال بازترکیب حامل‌های بار بسیار پایین بوده و لذا این دسته از ساختارها را می‌توان برای استفاده در ساختارهای آشکارسازها مفید و دارای بازدهی بالا ارزیابی نمود.

در این پژوهش با استفاده از نظریه تابعی چگالی، جایگاه‌های بهینه با در نظر گرفتن حضور نقص‌های خودبین‌نشین ساختار 4H-SiC مشخص گردید. در نهایت، از آنجا که دمای کاری آشکارسازهای پرتو در حدود ۳۰۰ کلوین می‌باشد، به منظور بررسی رفتار اتم‌های ساختار و نقص‌های موجود نسبت به ساختار در شرایط پایه (مشخص شدن نحوه تحول ساختارهای شامل نقص) محاسبات دینامیک مولکولی انجام گرفت. این امر می‌تواند در توسعه آشکارسازهای پرتو مهم باشد.

محاسبات با استفاده از بسته نرم‌افزاری Siesta انجام گرفت [۱۲]. در این محاسبات از اوربیتال‌های اتمی DPZ^۱ به عنوان توابع پایه، تقریب شیب تعمیم یافته PBE به عنوان تابعی تبادل-همبستگی و شبه‌پتانسیل از نوع بار-پایسته^۲ استفاده شد. محاسبات انجام شده به منظور تحلیل انرژی تشکیل، در دمای صفر و محاسبات مربوط به دینامیک مولکولی، در دمای ۳۰۰ کلوین یعنی دمای نزدیک به دمای اتاق انجام گرفته است.

نتایج

خواص الکترونی بلور کامل SiC

در گام اول محاسبات، خواص الکترونی ابرسلول بدون حضور نقص مورد بررسی قرار می‌گیرد و سپس، نتایج به دست آمده در حضور نقص با این نتایج مقایسه و مورد بحث قرار می‌گیرند. همان‌طور که می‌دانیم مواد جامد دارای ساختار نوار انرژی ویژه‌ای بوده و تفاوت

² Norm conserving

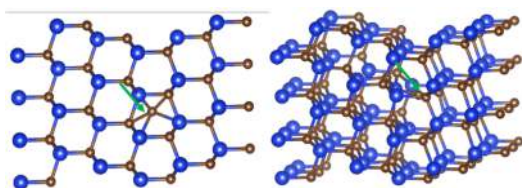
¹ Double Polarized Zeta

نورالزمان و همکاران با استفاده از تقریب PBE، حدود 2.45 eV است [۱۶]. مقادیر تجربی گزارش شده برای مقدار گاف 4H-SiC در حدود 3.3 است [۱۷]. علت اختلاف گاف انرژی محاسبه شده و تجربی، عمدتاً به علت محدودیت‌های موجود در تقریب‌های LDA و GGA است که می‌توان با استفاده از شبه‌پتانسیل‌های دقیق‌تر، این میزان اختلاف را کاهش داد.

خواص الکترونی بلور SiC در حضور نقص

خودبین نشین

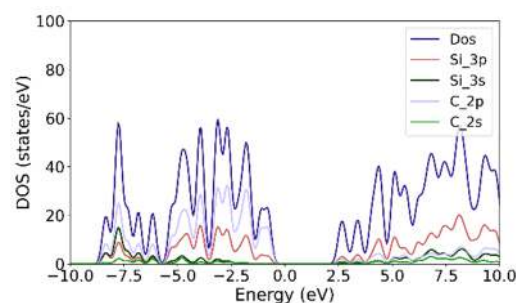
چنانچه اتم C از جایگاه اصلی خود جابه‌جا شده و در یک جایگاه خودبین نشینی قرار گیرد، وابسته به اینکه موقعیت جدید اتم نسبت به جایگاه اصلی دور و یا نزدیک باشد، دو رفتار نایکسان از این اتم مشاهده می‌شود. محاسبات انجام شده حاکی از آن است که چنانچه اتم کربن از جایگاه اصلی خود جابه‌جا شده و به یک مکان نزدیک (در اینجا حدود 4 \AA آنگستروم) منتقل شود، پس از گذشت حدود 120 فمتوثانیه به جایگاه اولیه خود بازمی‌گردد.



شکل ۵. تصویر ابتدایی و نهایی مربوط به نتایج دینامیک مولکولی ابتدا به ساکن در حضور نقص خودبین نشینی کربن در فاصله دور از جایگاه اصلی.

فرایند تحول نقص در مورد حالتی که اتم کربن به موقعیتی دور از جایگاه اولیه اش برده می‌شود، متفاوت از تغییر مکان به موقعیت نزدیک به جایگاه اصلی است.

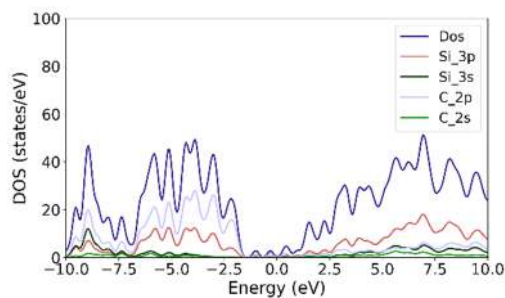
عامل اساسی دیگر در تعیین خواص الکترونی جامدات، نحوه توزیع انرژی الکترون‌های نوار رسانش و ظرفیت است و می‌توان نتایج حاصل از انجام محاسبات را به صورت منحنی چگالی حالت برحسب انرژی ارائه نمود. سطح زیر منحنی تالیه نوار ظرفیت، بیانگر تعداد حالت‌های مجاز برای حضور الکترون‌ها است و یک نتیجه مهم از این دسته از محاسبات، مشخص شدن سهم اوربیتال‌های اتمی مختلف در نوارهای ظرفیت و رسانش می‌باشد.



شکل ۴. چگالی حالت‌های تصویر شده اتمی 4H-SiC نسبت به سطح فرمی.

نتایج این محاسبات در شکل ۴ نمایش داده شده است. همان‌طور که در این شکل مشخص شده است، سهم اصلی اوربیتال‌های اتمی در نوار ظرفیت از اوربیتال‌های $2p$ اتم کربن ناشی می‌شود در حالی که در نوار رسانش این سهم برای هر دو اتم Si و C تقریباً یکسان است. که این نتایج با نتایج گزارش شده توسط مجیدی و همکاران سازگاری خوبی دارد [۱۳]. گاف انرژی محاسبه شده در تقریب PBE، در حدود 2.05 eV می‌باشد. ژائو و همکاران [۱۴] با استفاده از روش LCAO گاف انرژی 4H-SiC را 3.11 eV اعلام نموده و ژو و همکاران [۱۵] با تقریب LDA، این عدد را 2.25 eV گزارش نموده‌اند. همچنین مقدار اعلام شده توسط

می‌کنند که خاصیت نیم‌رسانایی از نوع n نسبت به حالت ساختار بدون نقص قوی‌تر شده است. همان‌گونه از شکل ۷ پیداست، در فاصله گاف انرژی، دو قله جدید ظاهر شده است که نشان‌دهنده بروز ترازهای تله می‌باشد و در تطابق با ساختار نواری شکل ۶ است. قله ظاهر شده در گاف انرژی، ناشی از سهم اوربیتال‌های $2p$ کربن است. مطابق با حالت ساختار بدون نقص، سهم اصلی اوربیتال‌های نوار ظرفیت همچنان از اوربیتال‌های $2p$ کربن است، اما سهم اصلی اوربیتال‌های نوار رسانش به‌طور تقریباً یکسان از اوربیتال‌های $2p$ کربن و $3p$ سیلیسیم ناشی شده است.



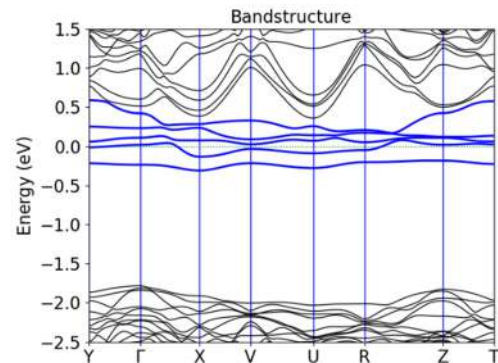
شکل ۷. چگالی حالت‌های تصویر شده اتمی 4H-SiC در حضور نقص خودبین‌نشینی کربن در موقعیت دور از جایگاه اصلی.

پربند^۱ چگالی بار، نحوه توزیع چگالی بار را در اطراف هر اتم نشان می‌دهد. در شکل ۸ تغییرات توزیع بار در ماده مشاهده می‌شود. برای این منظور، ابتدا توزیع چگالی بار برای هریک از ساختارها در فضای سه‌بعدی قبل و بعد از واهلش محاسبه شده و سپس اختلاف این دو توزیع محاسبه شد. در این شکل، رنگ زرد نشان‌دهنده تجمع بار الکترون در اطراف اتم و رنگ آبی

مقدار جابجایی اتم کربن نسبت به جایگاه اولیه‌اش در شبکه، حدود ۶ آنگستروم بوده است. بنابر نتایجی که از محاسبات حاصل شد، اتم کربن حتی پس از گذشت حدود ۴۰۰۰ فمتو ثانیه تمایلی به برگشت به جایگاه اولیه‌اش نداشته و به‌صورت مشخص شده در شکل ۵ اتم کربن اضافه شده به ساختار مایل به تشکیل پیوند با نزدیک‌ترین اتم کربن همسایه است. انرژی تشکیل این نقص، 12.24 eV است که با استفاده از رابطه زیر محاسبه شده است [۱۸]:

$$E_f = E_{tot}(def) - E_{tot}(no \text{ def}) \quad ۱$$

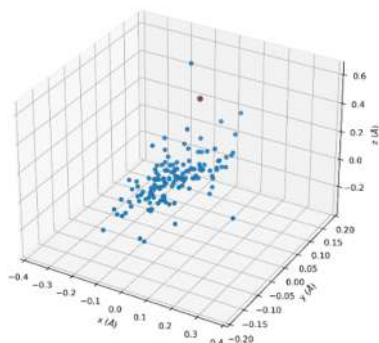
که در آن، $E_{tot}(def)$ انرژی کل ساختار دارای نقص، $E_{tot}(no \text{ def})$ انرژی کل ساختار بدون نقص می‌باشد.



شکل ۶. ساختار نواری مربوط به 4H-SiC در حضور نقص خودبین‌نشینی کربن در موقعیتی دور از جایگاه اصلی.

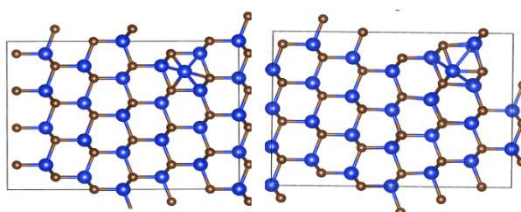
حضور چنین نقصی در شبکه منجر به تغییر خواص الکترونی ساختاری شبکه بلور می‌شود. به‌گونه‌ای که در شکل ۶ می‌توان مشاهده نمود، تعدادی نوار یا عبارتی تله در فاصله گپ ظاهر می‌گردد که برخی از آن‌ها در نزدیکی نوار رسانش اتفاق افتاده‌اند و این مفهوم را القا

^۱ کانتور



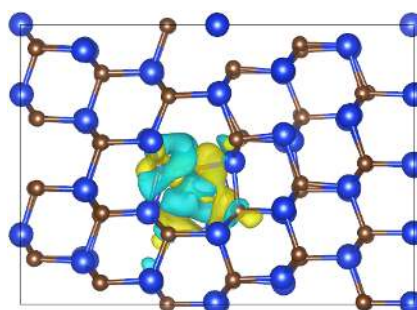
شکل ۹. بروز نقص‌های ثانویه در ساختار 4H-SiC در حضور نقص خودبین نشینی کربن در موقعیتی دور از جایگاه اصلی.

هنگامی که اتم Si از جایگاه اصلی خود جابه‌جا می‌شود و در یک جایگاه خودبین نشینی قرار می‌گیرد، چنانچه از جایگاه اصلی خود جابه‌جا و به یک مکان نزدیک منتقل شود (در اینجا حدود ۳/۶ آنگستروم)، پس از گذشت حدود ۱۶۰۰ فمتو ثانیه با قرار گرفتن اتم سیلیسیم در جایگاه اصلی اتمی، ساختار شبکه به ساختار 4H-SiC بدون نقص تبدیل می‌شود.



شکل ۱۰. تصویر ابتدایی (چپ) و نهایی (راست) مربوط به نتایج دینامیک مولکولی ابتدا به ساکن برای نقص خودبین نشینی سیلیسیم در فاصله دور از جایگاه اصلی. نتایج محاسبات برای حالتی که اتم سیلیسیم دور از جایگاه اصلی خود قرار گرفته (در اینجا حدود ۶/۵ آنگستروم)، نشان می‌دهد که این اتم حتی پس از گذشت حدود ۴۰۰۰ فمتو ثانیه تمایلی در بازگشت به جایگاه اولیه‌اش نداشته و به صورت مشخص شده در شکل ۱۰ با نزدیک‌ترین اتم کربن تشکیل پیوند می‌دهد.

نشان‌دهنده کاهش بار الکترون است. با توجه به بالاتر بودن الکترونگاتیویته اتم کربن نسبت به اتم سیلیسیم، انتظار می‌رود انتقال بار از اتم سیلیسیم به اتم کربن صورت گیرد. در مورد نقص بررسی شده، مشاهده می‌شود که چگالی کربن در محل تشکیل نقص، بالا رفته و لذا تجمع بار را در اطراف اتم‌های کربن مشاهده می‌کنیم.

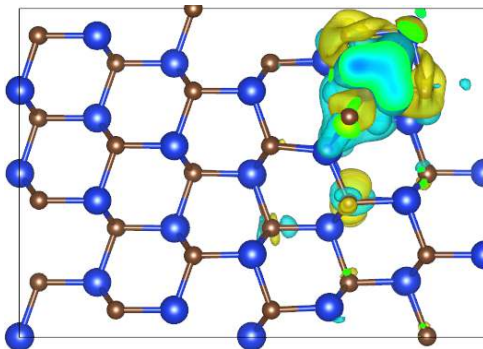


شکل ۸. تغییرات توزیع بار در ساختار 4H-SiC در حضور نقص خودبین نشینی کربن در موقعیتی دور از جایگاه اصلی.

با مقایسه حالت اولیه ($t=0$) و نهایی ($t=4000$) فمتوثانیه) مختصات اتم‌های ساختار دارای نقص، می‌توان تحول نقص و بروز نقص‌های ثانویه را به صورت اختلاف این دو مختصات مشاهده کرد. برای حضور نقص خودبین نشین کربن در ابرسلول 4H-SiC، نحوه تحول نقص پس از انجام محاسبات دینامیک مولکولی ابتدا به ساکن در نمودار ۹ رسم شده است. نقطه قرمز رنگ، اتم کربنی است که در یک جایگاه بین نشینی قرار داده شد. همان‌گونه که از این شکل پیداست، دامنه تغییرات مختصات در هر سه جهت x ، y و z کمتر از ۱ آنگستروم می‌باشد که مبین عدم برگشت اتم به جایگاه اولیه نیز هست.

بروز ترازهای تله می‌باشد و در تطابق با ساختار نواری شکل ۱۱ است. با این حال که نقص در نظر گرفته شده در این ساختار، از نوع خودبین‌نشینی اتم سیلیسیم بوده است، لیکن نکته قابل توجه این است که قله ظاهر شده در گاف انرژی، ناشی از سهم اوربیتال‌های $2p$ کربن است. مطابق با حالت ساختار بدون نقص، سهم اصلی اوربیتال‌های نوار ظرفیت و رسانش، همچنان از اوربیتال‌های به ترتیب $2p$ کربن و $3p$ سیلیسیم ناشی می‌شود.

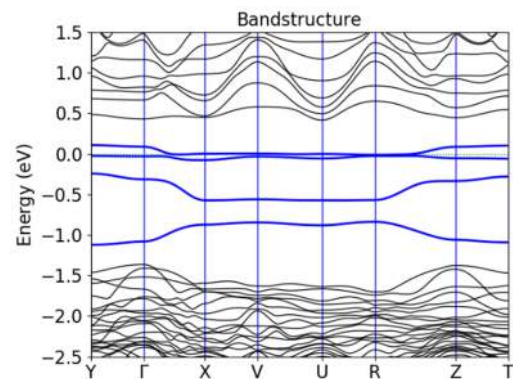
در شکل ۱۳ تغییرات توزیع بار در ساختار در حضور نقص خودبین‌نشینی سیلیسیم مشاهده می‌شود. با تغییر مکان اتم سیلیسیم و افزایش چگالی آن در محل تشکیل نقص، شاهد کاهش بار در اطراف اتم سیلیسیم و تجمع آن در اتم‌های کربن همان ناحیه می‌باشیم.



شکل ۱۳. تغییرات توزیع بار در ساختار $4H-SiC$ در حضور نقص خودبین‌نشینی سیلیسیم در موقعیتی دور از جایگاه اصلی.

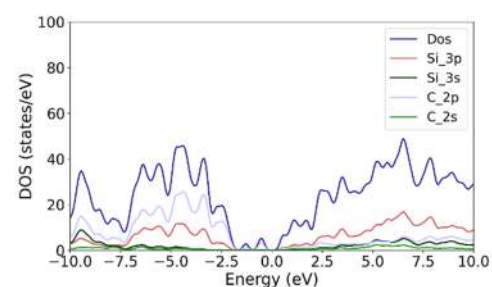
با مقایسه حالت اولیه ($t=0$) و نهایی ($t=4000$) فمتوثانیه) مختصات اتم‌های ساختار دارای نقص پس از انجام محاسبات دینامیک مولکولی ابتدا به ساکن، نمودار ۱۴ رسم شده است. نقطه قرمز رنگ، اتم سیلیسیم است که در یک جایگاه بین‌نشینی قرار داده شد. مقایسه

انرژی تشکیل این نقص، $15.04 eV$ است که با استفاده از رابطه ۱ محاسبه شده است.



شکل ۱۱. ساختار نواری مربوط به $4H-SiC$ در حضور نقص خودبین‌نشینی سیلیسیم در موقعیتی دور از جایگاه اصلی.

حضور چنین نقصی در شبکه منجر به تغییر خواص الکترونی ساختاری شبکه بلور و ایجاد تعدادی نوار یا به عبارتی تله در فاصله گپ می‌شود (شکل ۱۱) که بیشتر آنها در نزدیکی نوار ظرفیت اتفاق افتاده‌اند و به این مفهوم است که نیم‌رسانایی از نوع p ایجاد شده است.



شکل ۱۲. چگالی حالت‌های تصویر شده اتمی $4H-SiC$ در حضور نقص خودبین‌نشینی سیلیسیم در فاصله دور از جایگاه اصلی.

به صورت مشخص شده در شکل ۱۲، چگالی حالت‌ها نسبت به ساختار $4H-SiC$ بدون نقص، پهن‌تر شده و ارتفاع قله‌ها نیز کاهش یافته است. در فاصله گاف انرژی، دو قله جدید ظاهر شده است که نشان‌دهنده

خواص الکترونی و ساختاری 4H-SiC مورد بررسی قرار گرفت. بنا بر نتایج به دست آمده، جایگاه نقص ایجاد شده در شبکه مهم‌ترین عامل در تغییر خواص ذکر شده، بوده است. به طور کلی، یافته‌های این پژوهش را می‌توان به صورت زیر خلاصه نمود.

- فرایند بازترکیب در شبیه‌سازی دینامیک مولکولی به شدت وابسته به مکان نقص در شبکه بلور است. بازترکیب زوج فرنکل ایجاد شده در ساختار، در صورتی رخ داد که حفره و نقص به اندازه کافی به یکدیگر نزدیک باشند. به عبارتی، حداکثر فاصله میان این دو باید از مرتبه یک ثابت شبکه باشد.

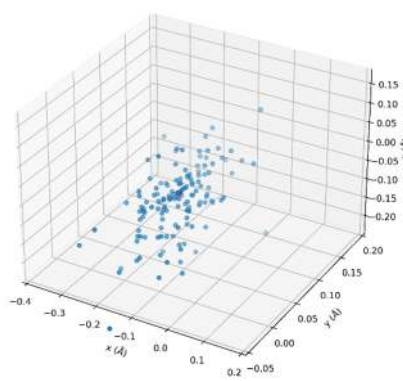
- چنانچه نقص خودبین‌نشین در فاصله نزدیک به جایگاه اصلی رخ دهد، ساختار طی مدت حدود ۱۲۰ و ۱۶۰۰ فمتوثانیه به ترتیب برای نقص خودبین‌نشین کربن و سیلیسیم به ساختار کامل باز می‌گردد.

- بازگشت اتم سیلیسیم به جایگاه اولیه سریع‌تر از اتم کربن رخ داد.

- در حالت بازترکیب زوج فرنکل، تغییرات بسیار ناچیزی در خواص الکترونی از جمله ساختار نواری و چگالی حالت‌ها مشاهده شد. در حالتی که زوج فرنکل بازترکیب نشدند، شاهد حضور ترازهای تله در گاف انرژی بودیم که وابسته به نوع نقص منجر به بروز یک نیم‌رسانای از نوع n و یا p شدند.

ملاحظه شد که به طور کلی نقص‌های اولیه اتم سیلیسیم، انرژی تشکیل بالاتری نسبت به اتم کربن دارند. علت این امر را می‌توان در تفاوت الکترونگاتیویته کربن و سیلیسیم جست. در ساختار سلول پایه 4H-SiC، هر سیلیسیم با سه اتم کربن در پیوند است و کربن، الکترونگاتیویته بیشتری نسبت به سیلیسیم دارد؛ یعنی پیوندهای کووالانسی آن قوی‌تر هستند. همچنین، هر

شکل‌های ۹ و ۱۴ نشان می‌دهد که حضور نقص خودبین‌نشین Si منجر به جابه‌جایی‌هایی با دامنه بیشتر در اتم‌های ساختار شده است که البته دلیل آن می‌تواند اندازه بزرگتر این اتم نسبت به اتم کربن و همچنین ایجاد جای خالی بزرگتر با رفتن به جایگاه بین‌نشینی باشد.



شکل ۱۴. بروز نقص‌های ثانویه در ساختار 4H-SiC در حضور نقص خودبین‌نشین سیلیسیم در موقعیتی دور از جایگاه اصلی.

بحث و نتیجه‌گیری

پیشرفت‌های اخیر در شبیه‌سازی چند-مقیاسی اندرکنش‌های یون-ماده نشان داده است که ایجاد نقص و تحول نقص در مواد می‌تواند منجر به توسعه چشمگیر در انتخاب موادی با مقاومت تابشی بالا شود. این موضوع در حیطه آشکارسازها، تأسیسات راکتورهای شکافت و گداخت، سلول‌های خورشیدی و سامانه‌های الکترونیکی مورد استفاده در فضا از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است. هدف از انجام این تحقیق، استفاده از محاسبات دینامیک مولکولی ابتدا به ساکن به منظور بررسی تحول نقص خودبین‌نشین در ساختار 4H-SiC بوده است.

بر این اساس، با استفاده از کد محاسباتی SIESTA اثرات حضور نقص‌های نقطه‌ای خودبین‌نشین بر

[8] M. Jiang, S. Peng, G. Yang, H. Gong, Z. Liu, L. Qiao, X. Zu, Ab initio molecular dynamics simulation of the radiation damage effects of GaAs/AlGaAs superlattice, *Journal of Nuclear Materials*, 516 (2019) 228-237.

<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.01.030>

[9] S. Zhang, M. Li, H. Xiao, Z. Liu, X. Zu, A comparative study of electron radiation response of $\text{Pu}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ and $\text{La}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$: An ab initio molecular dynamics study, *Journal of Materials*, 14 (2021) 1516.

<https://doi.org/10.3390/ma14061516>

[10] T. Kobayashi, K. Harada, Y. Kumagai, F. Oba, Y. Matsushita, Native point defects and carbon clusters in 4H-SiC: A hybrid functional study, *Journal of Applied Physics*, 125 (2019) 125701.

<https://doi.org/10.1063/1.5089174>

[11] X. Wang, J. Zhao, Z. Xu, F. Djurabekova, M. Rommel, Y. Song, F. Fang, Density functional theory calculation of the properties of carbon vacancy defects in silicon carbide, *Nanotechnology and Precision Engineering*, 3 (2020) 211-217.

<https://doi.org/10.1016/j.npe.2020.11.002>

[12] E. Artacho, E. Anglada, O. Dieguez, J.D. Gale, A. Gracia, J. Junquera, R.M. Martin, P. Ordejon, J.M. Pruneda, D. Sanchez, The SIESTA method; developments and applicability, *Journal of Physics: Condensed Matter*, 20 (2008) 064208.

<https://doi.org/10.1088/0953-8984/20/6/064208>

[13] S. Majidi, N. Beryani Nezafat, D.P. Rai, A. Achour, H. Ghaziasadi, A. Sheykhan, S. Solaymani, Optical and electronic properties of pure and fully hydrogenated SiC and GeC nanosheets: first-principles study, *Journal of Optical and Quantum Electronics*, 50 (2018) 1-13. <https://doi.org/10.1007/s11082-018-1556-3>

[14] G. Zhao, D. Bagayoko, Electronic structure and charge transfer in 3C- and 4H-

اتم کربن در این ساختار با سه اتم سیلیسیم در پیوند است که پیوندهای کووالانسی تشکیل شده در چنین حالتی، ضعیف‌تر از حالت گفته شده قبلی است. لذا هرگونه جابه‌جایی اتم سیلیسیم نیازمند صرف انرژی بیشتری نسبت به جابه‌جایی اتم کربن است.

مرجع‌ها

[1] G. Was, *The displacement of atoms, fundamentals of radiation materials science*, Springer, New York, (2017).

[2] S. Kanazawa, M. Okada, I. Kimura, *Application of Accelerators in Research and Industry*, American Institute of Physics, (2012) 881-884.

[3] B. Khorsandi, Ph.D. Thesis, Ohio State University, (2007).

[4] Y. Katoh, L.L. Snead, I. Szlufarska, W.J. Weber, Radiation effects in SiC for nuclear structural applications, *Journal of Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 16 (2012) 143-152.

<https://doi.org/10.1016/j.cossms.2012.03.005>

[5] B.J. Cowen, M.S. El-Genk, K. Hattar, S.A. Briggs, Investigation of irradiation effects in crystalline and amorphous SiC, *Journal of Applied Physics*, 126 (2019) 135902. <https://doi.org/10.1063/1.5085216>

[6] W. He, C. Chen, Z. Xu, Molecular dynamics simulations of silicon carbide nanowires under single-ion irradiation, *Journal of Applied Physics*, 126 (2019) 125902. <https://doi.org/10.1063/1.5121873>

[7] H. Gao, H. Wang, M. Niu, L. Su, Radiation damage behavior of amorphous SiOC polymer-derived ceramics: the role of in situ formed free carbon, *Journal of Nuclear Materials*, 545 (2021) 152652. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2020.152652>

Engineering Research and Applications, 5 (2015) 48-52.

[17] H. Morkoc, S. Strite, G. Gao, M. Lin, B. Sverdlov, M. Burns, Large-band-gap SiC, III-V nitride, and II-VI ZnSe-based semiconductor device technologies, Journal of Applied Physics, 76 (1994) 1363. <https://doi.org/10.1063/1.358463>

[18] F. Gao, E.J. Bylaska, W.J. Weber, L.R. Corrales, Native defect properties in b-SiC: Ab initio and empirical potential calculations, Journal of Nuclear Instruments and Methods in Physics, 180 (2001) 286-291. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(01\)00430-X](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(01)00430-X)

SiC, New Journal of Physics, 16 (2000) 1-12.

<https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1367-2630/2/1/316>

[15] X. Peng-Shou, X. Chang-Kun, P. Hai-Bin, X. Fa-Qiang, Theoretical study on the band structure and optical properties of 4H-SiC, Chinese Physics, 13 (2004) 2126-2129.

<http://iopscience.iop.org/1009-963/13/12/026>

[16] Md. Nuruzzaman, M. Ariful Islam, M. Ashraful Alam, M. Hadi Shah, A. Tanveer Karim, Structural, elastic and electronic properties of 2H- and 4H-SiC, Journal of