

امکان‌سنجی استفاده از ترکیب سه‌تایی $Zn_xHg_{(1-x)}Te$ به عنوان طیف‌نمای تابش‌های هسته‌ای

حسن قاسمی^۱، علی مختاری^۱، فریدون پیامی^۲ و ویشناسب سلیمانان^۱

۱. دانشکده فیزیک، دانشگاه شهرکرد، شهرکرد
۲. پژوهشکده مواد، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، اصفهان

(دریافت مقاله: ۱۳۹۵/۰۵/۳۱؛ دریافت نسخه نهایی: ۱۳۹۶/۰۶/۱۳)

چکیده

در این مقاله با هدف دستیابی به یک طیف‌نمای مناسب جهت آشکارسازی تابش‌های هسته‌ای در دمای محیط، تأثیر افزودن عنصر Hg به ترکیب دوتایی ZnTe به طور کامل مورد مطالعه قرار گرفت. بدین منظور با استفاده از کد محاسباتی ABINIT مبتنی بر نظریه تابعی چگالی، ساختار الکترونی و خواص ترابرد حامل‌های بار در ترکیب سه‌تایی $Zn_xHg_{(1-x)}Te$ شبیه‌سازی و بازه $x \geq 0.8$ مناسب تشخیص داده شد. در ضمن با استفاده از نرم‌افزار MCNP، تابع پاسخ این ترکیب سه‌تایی در مقایسه با طیف‌نمای محیطی متداول CdTe، ارائه گردید. این شبیه‌سازی و مقایسه نشان می‌دهد ترکیب فوق برای طیف‌نمایی تابش‌های هسته‌ای در دمای محیط مناسب است.

واژه‌های کلیدی: طیف‌نمای هسته‌ای، نظریه تابعی چگالی، تابع پاسخ، دمای محیط

۱. مقدمه

بازده شمارش بالا برای تابش‌های فرودی مختلف باشد [۱]. امروزه بلور خالص ژرمانیوم به دلیل دارا بودن قدرت تفکیک بسیار بالا نسبت به سایر بلورهای نیم‌رسانا، به عنوان طیف‌نما مورد استفاده قرار می‌گیرد. اما از یک طرف قدرت تفکیک این بلور نسبت به تعداد زیادی از بلورهای نیم‌رسانا به صورت چشمگیری پایین است و از طرف دیگر آمار تولید نوفه‌های حرارتی غیر مطلوب در این بلور بسیار زیاد بوده و امکان طیف‌نمایی در دمای محیط را منتفی می‌نماید و چاره‌ای جز

در دو دهه اخیر روش‌های طیف‌نگاری با استفاده از بلورهای نیم‌رسانا پیشرفت چشمگیری داشته است. این طیف‌نمایی شامل تابش‌های پرتوی ایکس، گاما، بتا، آلفا، نوترون و سایر یون‌های سنگین است. این تابش‌ها در تصویرنگاری پزشکی، تصویرنگاری صنعتی، ایمنی محیط زیست از نظر مواد پرتوزا، تحقیقات علوم پایه و موارد متعدد دیگر کاربرد زیادی دارند. بلوری برای طیف‌نمایی مناسب است که دارای قدرت تفکیک و

اقتصادی، امکان تولید حجم بالای بلور و موارد مشابه دیگر را اضافه نمود.

ترکیب سه‌تایی $Zn_xHg_{(1-x)}Te$ (ZHT) برای x های کوچک‌تر از ۰٫۵، دارای انرژی گاف کوچک از مرتبه امواج فروسرخ است [۶]. با تزریق ناخالصی از نوع n یا p و اعمال فرایند خنک‌سازی تا دمای نیتروژن مایع، می‌توان نرخ پراکندگی الکترون‌ها از روی ناخالصی‌ها و در نتیجه ترابرد الکترونی در آن را افزایش داده و از آن به عنوان طیف‌نمای ناحیه فروسرخ استفاده نمود. در این پژوهش سعی می‌کنیم با رویکرد دستیابی به یک طیف‌نمای محیطی با قدرت تفکیک و بازده شمارش مناسب در ناحیه فرابنفش، ایکس و گاما، تأثیر افزودن Hg در ساختار بلوری ترکیب دو‌تایی ZnTe و تشکیل سه‌تایی $Zn_xHg_{(1-x)}Te$ برای x های بزرگ‌تر از ۰٫۵ را بررسی نماییم. از جمله دلایل افزودن Hg به ترکیب ZnTe و انتخاب ترکیب ZHT در این پژوهش، عدد اتمی بالای Hg و Te، انرژی گاف ناچیز ترکیب HgTe و ترابرد بسیار بالای حامل‌های بار در HgTe است. از آنجایی که خواص فیزیکی سه‌تایی‌ها بین خواص فیزیکی دو‌تایی‌های سازنده آنها قرار دارد پیش‌بینی می‌کنیم ترکیب سه‌تایی ZHT در x های خاصی خاص، شرایط یک آشکارساز خوب که در بالا ارائه شد را برآورد می‌کند. به این منظور نوار انرژی، گاف انرژی، تحرک‌پذیری الکترون‌ها و حفره‌ها، عمر زوج الکترون-حفره و مقاومت الکتریکی این ترکیب سه‌تایی به روش محاسباتی بررسی می‌شود [۵-۱۱].

۳. ابزار محاسباتی

گاف انرژی: برای انجام محاسبات فوق از بسته نرم‌افزاری ABINIT استفاده نمودیم [۱۲]. برای محاسبه نوار انرژی و بررسی مستقیم بودن گاف نظریه تابعی چگالی متعارف به کار می‌رود. اما از آنجایی که برآورد گاف انرژی توسط نظریه تابعی چگالی متعارف دقیق نیست، از تقریب GW که مبتنی بر توابع گرین است و در ساختار ABINIT فراهم شده استفاده شد. ترابرد بار: پراکندگی بارها در بلورهای قطبی همانند ZHT به طور غالب مربوط به پراکندگی الکترون و حفره آزاد از

سرد کردن بلور تا دماهای بسیار پایین در حین کار (حدود ۸۰- درجه سانتی‌گراد توسط نیتروژن مایع) باقی نمی‌ماند که این امر ضمن افزایش هزینه‌ها، موجب عدم امکان انتقال آشکارساز به محیط‌های اندازه‌گیری است [۲-۴]. از این لحاظ کار بر روی مواد جدید شامل ترکیبات نیم‌رسانای دو‌تایی (مانند $CdZnTe$, $CdMnTe$, $InSb$, $InAs$, $CdTe$) و سه‌تایی (مانند $CdZnTe$, $CdMnTe$, $InSb$, $InAs$, $CdTe$) جهت دستیابی به یک طیف‌نمای محیطی با قدرت تفکیک و بازده شمارش مناسب در ناحیه فرابنفش، ایکس و گاما ادامه دارد. این امر با سرعت تمام در آزمایشگاه‌های دنیا با افقی روشن در حال توسعه است.

۲. ویژگی‌های فیزیکی بلور مناسب برای استفاده در طیف‌نمایی

مشخصه‌های کلیدی بلورهای مناسب مورد استفاده در آشکارسازی عبارت است از [۵]:

۱- عدد اتمی بالا: پدیده اساسی در طیف‌نمایی، تولید زوج الکترون-حفره توسط پدیده فوتوالکتریک است که نرخ تولید با توان ۴ عدد اتمی رابطه مستقیم دارد.

۲- انرژی گاف مناسب: انرژی گاف کمتر، نرخ تولید زوج در بلور را افزایش می‌دهد که باعث افزایش قدرت تفکیک و بازده آشکارساز می‌شود. اما به دلیل آن که در بلورهای با انرژی گاف کمتر از حدوداً ۱٫۵ الکترون‌ولت، نوفه‌های حرارتی مزاحم تولید می‌شود و بر آمار شمارش اثر نامطلوب می‌گذارد. بنابراین انرژی گاف حدود ۱٫۵ تا ۲٫۵ الکترون‌ولت برای طیف‌نمایی در ناحیه فرابنفش، ایکس و گاما در دمای محیط مناسب است.

۳- $\mu\tau$ بالا: بلوری برای طیف‌نمایی مناسب است که حاصل ضرب تحرک‌پذیری حامل‌های بار (μ) در عمر زوج الکترون-حفره (τ) تولیدی در آن بالا باشد، که این امر باعث افزایش بازده آشکارساز می‌شود.

۴- به موارد فوق بایستی مقاومت الکتریکی بالا (جهت کاهش نوفه‌های حرارتی مزاحم)، خلوص فوق‌العاده، صرفه

فونون‌های طولی اپتیکی است که از رابطه زیر تبعیت می‌کند [۷]

فونون‌های طولی اپتیکی است که از رابطه زیر تبعیت می‌کند [۷]

$$\mu_{\text{total}} = \mu_{\text{polar optical phonons}} = \frac{1}{2} (\frac{1}{2} \pi \omega_{LO})^{\frac{1}{2}} / (\frac{1}{2} m^{\frac{1}{2}} E_g n(\omega_{LO}) x_0^{\frac{1}{2}} e^{\frac{1}{2}} K_1(x_0 / 2)), \quad (1)$$

که در آن

$$n(\omega_{LO}) = \frac{1}{2} [e^{x_0} - 1], \quad (2)$$

$$x_0 = \omega_{LO} / (k_B T), \quad (3)$$

$$E_g = m e \omega_{LO} (1 / \epsilon^{\infty} - 1 / \epsilon^0) / \frac{1}{2} \pi^2, \quad (4)$$

$$K_1(t) = t \int_0^{\infty} (z^2 - 1)^{-\frac{1}{2}} e^{-tz} dz, \quad (5)$$

مؤثر بار، بسامد فونون‌های طولی اپتیکی، دما، تابع توزیع بوز-اینشتین، ثابت دی‌الکتریک استاتیک و ثابت دی‌الکتریک بسامدهای بالا است. در ضمن با تقریب بسیار خوبی داریم

$$\epsilon^{\infty} \approx 0.7 \epsilon^0. \quad (6)$$

طبق روابط فوق، برای بررسی تحرک‌پذیری الکترون‌ها و حفره‌ها نیاز به محاسبه جرم مؤثر بارها، ثابت دی‌الکتریک و بسامدهای فونونی نوری است، که این کمیت‌ها توسط بسته نرم‌افزاری ABINIT محاسبه شد.

مقاومت الکتريکی: معادله حاکم بر مقاومت الکتريکی در نیم‌رسانا عبارت است از

$$R = 1 / \sigma = 1 / (ne(\mu_e + \mu_h)), \quad (7)$$

σ ، n ، μ_e و μ_h به ترتیب رسانندگی الکتريکی، چگالی ابر الکترونی، تحرک‌پذیری الکترون‌ها و تحرک‌پذیری حفره‌ها است. عمر مفید زوج الکترون-حفره: عمر مفید آکسیتون‌ها در نیم‌رسانا از رابطه زیر پیروی می‌کند [۱۲]

$$\tau_{\text{rad}}^i \approx 1 / (2B_r n_i), \quad (8)$$

که در آن

$$B_r = (\frac{1}{2} \pi)^{\frac{1}{2}} e^{\frac{1}{2}} (\epsilon^0)^{\frac{1}{2}} (m_e + m_h)^{-\frac{1}{2}} (1 + m_e / m_h + m_e / m_h) E_g^{\frac{1}{2}} / \left[\frac{1}{2} m_e^{\frac{1}{2}} c^{\frac{1}{2}} (k_B T)^{\frac{1}{2}} (m_e c^{\frac{1}{2}})^{\frac{1}{2}} \right] \quad (9)$$

کلیمه کمیت‌های فیزیکی مورد نیاز جهت محاسبه مقاومت الکتريکی و عمر مفید آکسیتون‌ها نیز توسط ABINIT به دست آمد. نرم‌افزار ABINIT بر اساس نظریه تابعی چگالی و با استفاده از شبه پتانسیل‌ها برای توصیف پتانسیل اطراف یون‌ها و به کارگیری پایه‌های توابع موج تخت جهت بسط اربیتال‌های تک‌ذره عمل می‌نماید. در این پروژه از شبه پتانسیل‌های با تقریب GGA از نوع Trouiller-Martins^۱ و یا HGH^۲ با انرژی قطع ۳۰ هارتری و مش‌بندی ۴×۴×۴ برای نقاط بردار موج استفاده گردید [۱۳]. انرژی قطع و مش‌بندی فوق با بررسی همگرایی انرژی کل تا مرتبه ۱۰^{-۱۲} به دست آمده است. ZnTe و HgTe که ترکیبات دوتایی تشکیل دهنده ترکیب سه‌تایی ZHT هستند از یک خانواده، و دارای ساختار شبکه‌ای مشابه ZB^۳ می‌باشند. در این موارد نرم‌افزار به جای استفاده از روش ابریاخته از روش بسیار ساده‌تر ولی قابل قبول ترکیب کیمیایی شبه پتانسیل‌ها^۴ استفاده می‌نماید [۱۳].

۴. محاسبات

مراحل زیر برای بررسی ترکیب سه‌تایی ZHT انجام شد:

۱- برای برآورد حدود تقریبی گاف انرژی ZHT، نوارهای انرژی ZnTe و HgTe بر اساس تقریب GGA با استفاده از شبه پتانسیل‌های HGH و با در نظرگیری برهم‌کنش ناشی از جفت شدگی اسپین-مدار رسم شده‌اند که در شکل ۱ آمده است.

۲- گاف انرژی ترکیب سه‌تایی ZHT به سه روش: تقریب GGA بدون برهم‌کنش اسپین-مدار، تقریب GGA حضور برهم‌کنش اسپین-مدار و در نهایت تقریب GW به

۱. Perdew-Burke-Ernzerhof (1996)

۲. Hartwigsen-Goedecker-Hutter

۳. Zincblende

۴. Alchemical mixing of pseudopotentials

دست آمد که در شکل ۲ نشان داده شده است. مقدار تجربی انرژی گاف برای ZnTe نیز آورده شده است. همان طور که انتظار می رود نظریه GW برآورد بسیار خوبی از انرژی گاف می دهد. برای آن که آشکارساز بتواند بدون فرایند خنک سازی، در دمای محیط کار کند بایستی انرژی گاف آن از حدود ۱/۵ الکترون ولت بیشتر باشد. شکل ۲ بازه ۰/۸ x را پیشنهاد می دهد. بنابراین در محاسبات بعدی صرفاً بازه ۰/۸ x \geq در نظر گرفته می شود. لازم به ذکر است داده های تجربی برون یابی شده در شکل ۵ مرجع [۶]، نتیجه گیری حاصل از شبیه سازی ما را تأیید و بازه ۰/۸ x را برای انرژی گاف بیش از ۱/۵ الکترون ولت گزارش می کند.

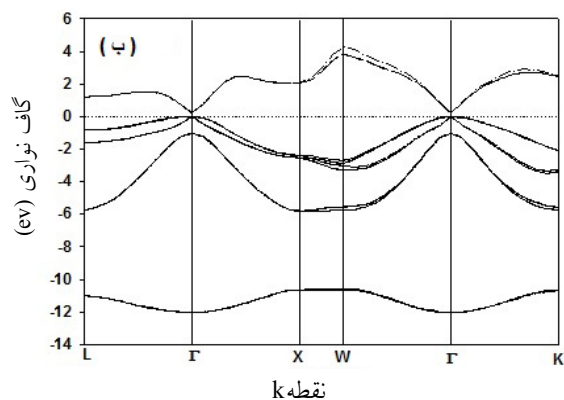
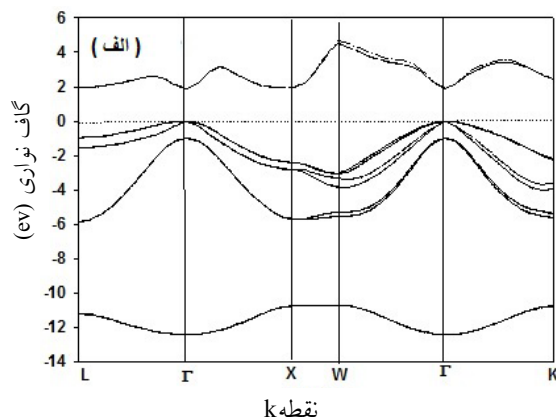
۳- نوار انرژی ترکیب سه تایی ZHT برای $\alpha = 0.8$ و 0.85 و 0.9 رسم شده در شکل ۳، نشانگر مستقیم بودن گاف انرژی است که این امر برای طیف نمایی ضروری است.

۴- تحرک پذیری ترکیب سه تایی فوق محاسبه و رسم شد. شکل ۴ نشان می دهد که افزودن کمتر از ۲ درصد Hg به ترکیب دوتایی ZnTe تحرک پذیری را به شدت افزایش می دهد.

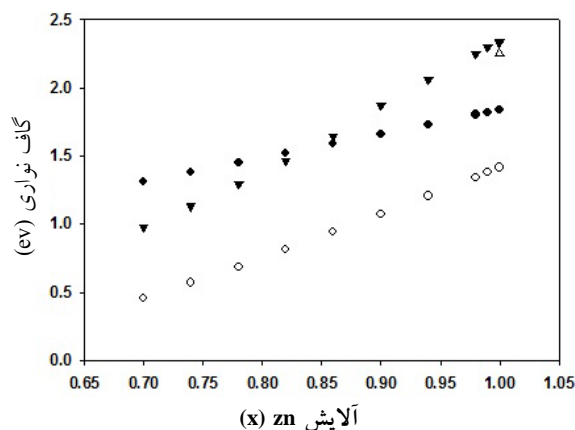
۵- مقاومت الکتریکی ترکیب سه تایی فوق که در شکل ۵ آمده است نشان می دهد این کمیت از مرتبه $10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$ است و با مقدار تجربی مقاومت الکتریکی ZnTe همخوانی دارد [۵]. با توجه به این که برای جلوگیری از جریانات نشتی در طیف نمایی در دمای محیط حداقل مقاومت الکتریکی $10^9 \Omega \cdot \text{cm}$ نیاز است، این ترکیب از نظر مقاومت الکتریکی مناسب است.

۶- عمر زوج الکترون-حفره تولیدی در دمای محیط برای ترکیب سه تایی فوق رسم شده در شکل ۶ نشان می دهد با افزایش Hg به ترکیب دوتایی ZnTe عمر، افزایش می یابد.

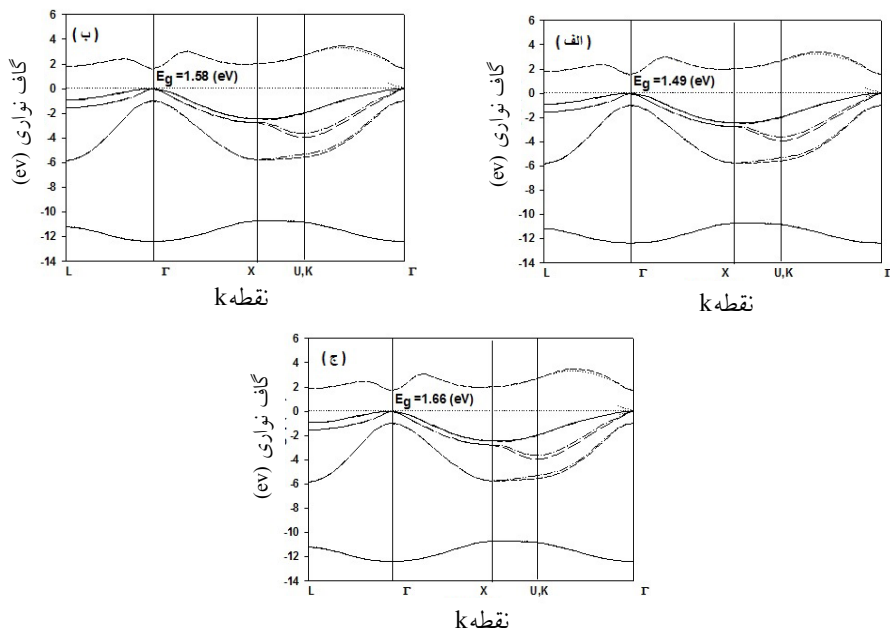
۷- تابع پاسخ شبیه سازی شده از نیم رساناهای CdTe و $\text{Zn}_{0.8}\text{Hg}_{0.2}\text{Te}$ برای انرژی گامای فرودی 0.661 مگا الکترون ولت با استفاده از کد شبیه ساز MCNP محاسبه و در شکل ۷ آمده است. همان طور که مشاهده می شود این ترکیب سه تایی به خوبی با CdTe به عنوان یک آشکارساز



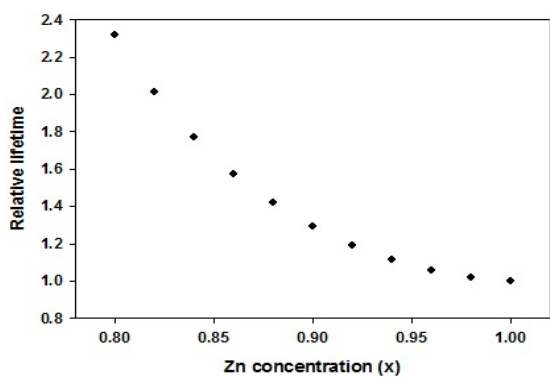
شکل ۱. نوار انرژی برای نظریه های GGA (توپر) و GW (نقطه چین) برای (الف) ترکیب ZnTe، (ب) ترکیب HgTe.



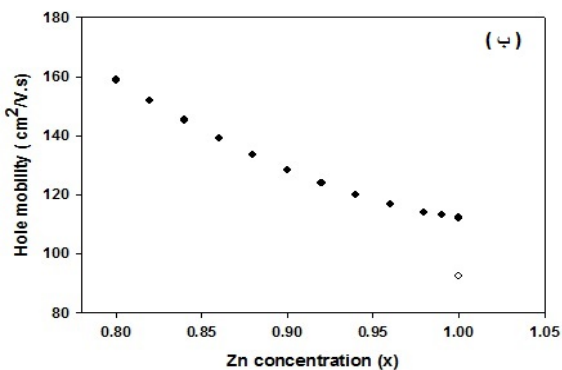
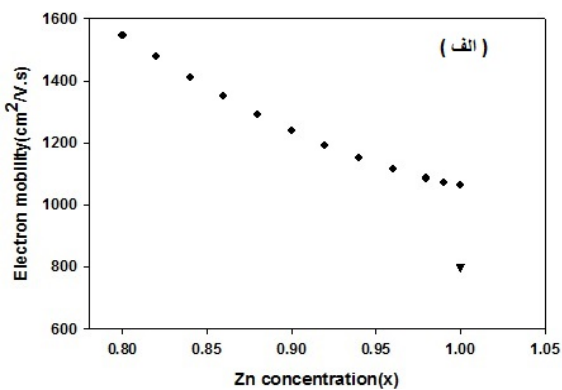
شکل ۲. گاف انرژی ترکیب سه تایی ZHT با استفاده از تقریب GGA بدون برهم کنش اسپین-مدار (دایره توخالی)، تقریب GGA در حضور برهم کنش اسپین-مدار (دایره توپر) و در نهایت تقریب GW (مثلث توپر). مقدار تجربی گاف انرژی ZnTe با مثلث تو خالی آمده است، که نشانگر درستی محاسبات گاف انرژی با تقریب GW است.



شکل ۳. نوار انرژی ترکیب سه‌تایی ZHT، (الف) $x = 0.8$ ، (ب) $x = 0.85$ ، (ج) $x = 0.9$ که مستقیم بودن گاف را نشان می‌دهد.

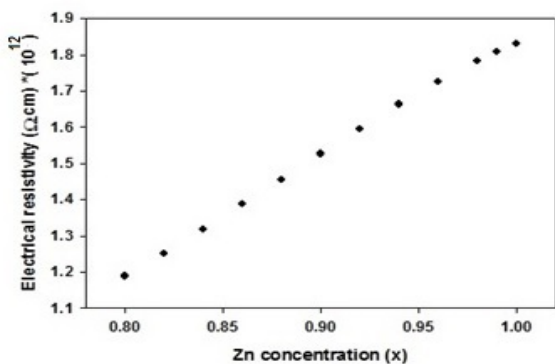


شکل ۵. مقاومت الکتریکی ترکیب سه‌تایی ZHT

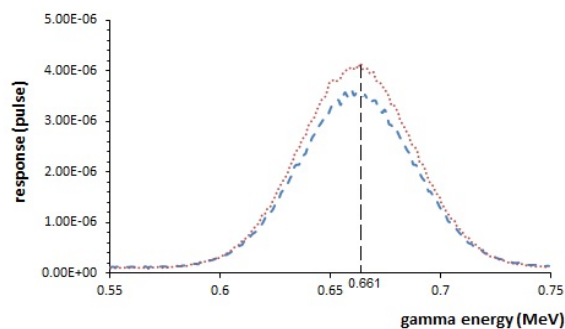


شکل ۴. تحرک‌پذیری (الف) الکترون‌ها و (ب) حفره‌ها در ترکیب

سه‌تایی ZHT. در شکل (الف) مقدار تجربی تحرک‌پذیری الکترون با مثلث توپر و در شکل (ب) مقدار تجربی تحرک‌پذیری حفره‌ها با دایره توخالی نشان داده شده است.



شکل ۶. عمر الکترون-حفره ترکیب سه‌تایی ZHT در دمای محیط.



شکل ۷. تابع پاسخ شبیه‌سازی شده از نیم‌رساناهای CdTe (خط چین) و $Zn_{0.8}Hg_{0.2}Te$ (نقطه چین).

به فرایند خنک‌سازی از یک سو و امکان تولید آزمایشگاهی بسیار دقیق ترکیبات سه‌تایی، چهارتایی و بالاتر از سوی دیگر (که از آن جمله می‌توان به روش‌های MBE^۱ و MOCVD^۲ اشاره نمود)، افق روشنی را در لزوم بررسی محاسباتی این ترکیبات ایجاد نموده است. در این مقاله به صورت شبیه‌سازی، خواص ساختاری ZHT برای انتخاب ترکیب سه‌تایی مناسب به عنوان طیف‌نمای هسته‌ای، بررسی شده است. گاف انرژی مناسب، ترابرد بار قابل قبول و تابع پاسخ مناسب به تابش هسته‌ای فرودی برای گستره x بیش از ۰/۸، نشان می‌دهد این ترکیب، برای ساخت طیف‌نمای هسته‌ای، مناسب است.

ستتی در دمای محیط، قابل مقایسه است. در این شبیه‌سازی، بلورها را به صورت استوانه‌هایی با هندسه کاملاً مشابه، با قطر ۳ اینچ و ضخامت ۳ اینچ که از مرتبه ابعاد هندسی یک بلور آشکارساز محیطی است در نظر گرفتیم که به مدت ۲ ساعت تحت تابش گامای ^{137}Cs در فاصله ۰/۰۱ سانتی‌متر از بلور قرار دارد. تالی مورد استفاده تالی F8 مربوط به تابع پاسخ آشکارساز است که تعداد نسبی تپ‌های تولیدی در شکل ۷ آورده شده است.

۵. نتیجه‌گیری

لزوم دستیابی به طیف‌نمایی دقیق تابش‌های هسته‌ای بدون نیاز

مراجع

1. M Pschl and L M L Nollet, "Radionuclide Concentrations in Food and the Environment", CRC Press (2007) 269.
2. A Owens and A Peacock, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **531** (2004) 18.
3. J Seco, B Clasié, M Partridge, *Phys. Med. Biol.* **59** (2014) R303.
4. S Tiwari, "Compound Semiconductor, Device Physics", Academic press (1992).
5. T E Schlesinger, J E Toneyb, H Yoonc, E Y Leed, B A Brunettd, L Franksd, and R B Jamesd, *Materials Science and Engineering* **32** (2001) 103.
6. A Rogalski, *Prog. Quant. Electr.*, **13** (1989) 299.
7. C Jacoboni, "Theory of Electron Transport A Pathway from Elementary Physics to Nonequilibrium Green Functions", Springer (2010) 127.
8. B eddine N Brahmī, A Elhasnane Merad and S Dergal, *Journal of Materials Science and Engineering A* **3** (2013) 192.
9. J W Nicklasa and J W Wilkins, *Applied Physics Letters* **97** (2010) 091902.
10. I Vurgaftmana and J R Meyer, *Journal of Applied Physics* **89**, 11 (2001) 5815.
11. Y Kim, M Marsman, and G Kresse, *Physical Review B* **82** (2010) 205212.
12. B V Olson, "Time-resolved Measurements of Charge Carriers Dynamics and Optical Nonlinearities in Narrow Band Gap Semiconductors", PhD Thesis, University of Iowa (2013) 39.
13. X Gonze et al., *Computer Physics Communications* **180** (2009) 2582.

۱. Molecular Beam Epitaxy

۲. Metal Organic Chemical Vapor Deposition