

Research Paper

Structural, Electronic and Optical Properties of Bulk and Monolayer Iron Dichalcogenide FeX_2 (X= S, Se, Te) from Density Functional Theory¹

Razieh Beiranvand^{*2} and Vahid Mehrabi³

Received: 2021.08.18

Revised: 2021.11.07

Accepted: 2021.12.15

Abstract

In this work, the structural, electronic, and optical properties of bulk and monolayer of Iron dichalcogenides FeX_2 (X= S, Se, Te) have been investigated using the full potential linearized augmented plane wave (FP-LAPW) in the framework of density functional theory (DFT) with Wien2k simulation package. The calculated results show that FeX_2 compounds in the bulk structure are non-magnetic semiconductors with a direct gap at the Γ point, while the monolayer compounds are ferromagnetic with metallic character. The band structure and energy gap of bulk and monolayer structures of FeX_2 are calculated using GGA-PBE and GGA-*mbj* approximations that Becke-Johnson functional gives us better results for band gaps. All-optical properties such as real and imaginary parts of the dielectric function, absorption and reflection coefficients, refractive and extinction index, conductivity, and electron energy loss spectrum have been calculated and analyzed for bulk and monolayer. The High amplitude and wide absorption coefficient in the visible and ultraviolet region make these compounds a good candidate for use in photoelectric instruments and solar cells. Since monolayer compounds show magnetic properties, all calculations for monolayer compounds are performed in the spin-polarized form.

Keywords: *Iron Dichalcogenide, Density Functional Theory, Electronic Properties, Optical Properties, Spin-polarized.*

¹ DOI: 10.22051/ijap.2021.36526.1232

² Assistant Professor, Physics Group, Department of Basic Science, Ayatollah Boroujerdi University, Boroujerd, Iran. (Corresponding Author). Email: razieh.beiranvand@gmail.com

³ M. Sc. Graduated, Physics Group, Department of Basic Science, Ayatollah Boroujerdi University, Boroujerd, Iran. Email: v.mehrabi63@gmail.com

ویژگی‌های ساختاری، الکترونی و اپتیکی انبوهه و تک لایه دی کلکوژنیدهای آهن

FeX_2 (X=S, Se, Te) با استفاده از نظریه تابعی چگالی^۱

راضیه بیرانوند*^۲ و وحید مهرابی^۳

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۰۵/۲۷

تاریخ بازنگری: ۱۴۰۰/۰۸/۱۶

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۰۹/۲۴

فصلنامه علمی فیزیک کاربردی ایران

دانشکده فیزیک شیمی، دانشگاه الزهرا

سال یازدهم، پیاپی ۲۷، زمستان ۱۴۰۰

صص ۱۶-۳۷

چکیده:

در این مطالعه ویژگی‌های ساختاری، الکترونی و اپتیکی دی کلکوژنیدهای آهن FeX_2 (X=S, Se, Te) در حالت انبوهه و تک لایه با استفاده از روش امواج تخت بهساخته خطی با پتانسیل کامل (FP-LAPW) در چارچوب نظریه تابعی چگالی (DFT) و با استفاده از کد محاسباتی Wien2k مورد بررسی قرار گرفته است. نتایج به دست آمده نشان می‌دهند که ترکیبات FeX_2 در حالت انبوهه، نیمه‌رسانای غیرمغناطیسی با شکاف مستقیم در نقطه گاما هستند. در حالی که این ترکیبات در حالت تک لایه، فرومغناطیس بوده و ویژگی فلزی از خود نشان می‌دهند. ساختار نواری و شکاف انرژی انبوهه FeX_2 با تقریب‌های GGA-PBE و GGA-*mbj* محاسبه و مورد مقایسه قرار گرفته‌اند. نتایج حاصله نشان می‌دهد که تابع بک جانسون مقدار بهتری برای شکاف انرژی پیشنهاد می‌دهد. تمامی طیف‌های اپتیکی مانند قسمت حقیقی و موهومی تابع دی‌الکتریک، ضریب جذب، ضریب بازتاب، ضریب شکست، ضریب خاموشی، رسانندگی و طیف اتلاف انرژی الکترون در هر دو حالت انبوهه و تک لایه محاسبه و نتایج گزارش و بررسی شده است. با توجه به نتایج بدست آمده در محدوده انرژی فرابنفش، ضریب جذب و ضریب بازتاب تمامی ترکیبات FeX_2 در حالت انبوهه به مراتب بیشتر از حالات تک لایه است و با توجه به مقدار کمایش بزرگ این ضرایب، استفاده از ساختارهای انبوهه به منظور محافظ موج الکترومغناطیس فرابنفش در این محدوده انرژی مفیدتر است. در حالی که در محدوده نور مرئی، با توجه به یکسان بودن ضریب جذب و کمتر بودن ضریب بازتاب حالت تک لایه نسبت به حالت انبوهه، استفاده از ساختارهای تک لایه به منظور لایه‌های جاذب در سلول‌های خورشیدی دارای بازدهی بیشتری می‌باشد. ضریب جذب بالا و پهن در ناحیه نور مرئی و فرابنفش، این ترکیبات را گزینه‌های مناسبی برای استفاده در ابزار فوتوالکتریک و سلول‌های خورشیدی می‌کند. لازم به ذکر است، از آنجایی که ترکیبات تک لایه دارای ویژگی مغناطیسی می‌باشند، تمامی محاسبات حالت تک لایه در حالت اسپین قطبیده انجام شده است.

واژگان کلیدی: دی کلکوژنیدهای آهن، نظریه تابعی چگالی، ویژگی الکترونی، ویژگی اپتیکی، اسپین قطبیده.

^۱ DOI: 10.22051/ijap.2021.36526.1232

^۲ استادیار، گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه آیت ... بروجردی، بروجرد، ایران. (نویسنده مسئول). Email: razieh.beiranvand@gmail.com

^۳ دانش‌آموخته کارشناسی ارشد، گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه آیت ... بروجردی، بروجرد، ایران. Email: v.mehrabi63@gmail.com

۱. مقدمه

کشف ساختار تک لایه گرافن در سال ۲۰۰۴ [۱] دریچه جدیدی به دنیای مواد دو بعدی باز کرد. اگرچه این موفقیت بسیار بزرگی به شمار می‌آید اما نبود شکاف انرژی در این ترکیب، نقطه تاریک این موفقیت بود. با الهام از ساختار تک لایه گرافن، تعداد بسیار زیادی ساختار دوبعدی مانند نیتريد بور شش ضلعی [۲]، دی کلکوژنیدهای فلزات واسطه نظیر دی سولفید مولیبدن (MoS_2) [۳]، ترکیب دوتایی SnSe [۴]، ترکیب سه تایی Nb_3SiTe_6 [۵] و ساختارهای اکسید فلزی ZnO [۵,۶]، CaO و SrO [۷,۸] به دلیل ویژگی‌های اپتیکی متنوع و استفاده در ابزارهای الکترواپتیکی چون سلول‌های خورشیدی بسیار مورد توجه محققان قرار گرفتند.

در این میان ساختارهای دو بعدی و سه بعدی دی کلکوژنیدهای آهن با فرمول ساختاری FeX_2 ($\text{X}=\text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) وجود دارند که دارای ویژگی‌های منحصر به فرد الکترونی و اپتیکی مانند ضریب جذب و رسانندگی بالا و شکاف انرژی مناسب هستند [۹]. کلکوژنیدهای فلز واسطه، مانند آهن، بسیار کوانتومی هستند و ویژگی‌های نیمه‌رسانایی آن‌ها این مسئله را به خوبی نشان می‌دهد. وجود آهن به عنوان یکی از مهمترین عناصر مغناطیسی موجود در طبیعت در این ترکیبات، آن‌ها را به گزینه‌های بسیار مناسبی برای استفاده در ابزارهای الکترونیکی، الکترواپتیکی [۱۰ - ۱۳] و اسپینترونیک [۱۰ - ۱۵] تبدیل کرده است. در میان ساختارهای دی کلکوژنید آهن، سولفیدها مهمترین هستند. دی سولفید آهن یا پیریت، یک جامد دیامغناطیسی تیره است که در طبیعت به فراوانی یافت می‌شود. دی سلناید و دی تلوراید آهن نیز نیمه‌رساناهایی با ویژگی آنتی فرومغناطیس هستند که در حالت سه بعدی در هر دو ساختار پیریت و مارکازیت سنتز می‌شوند و ویژگی‌های الکترونی و اپتیکی قابل توجهی از خود نشان می‌دهند.

از آنجایی که دی کلکوژنیدهای آهن در طبیعت اغلب در دو ساختار سه بعدی پیریت و مارکازیت دیده می‌شوند که هیچ یک از آن‌ها دارای ساختار لایه‌ای و اندروالیسی نیست، وجود ساختارهای تک لایه‌ی دی کلکوژنیدهای آهن غیرمسلّم فرض می‌شد تا اینکه پایداری ساختارهای تک لایه با مطالعه آتاکا و همکاران [۱۶] گزارش شد. پیش از این برخی ویژگی‌های الکترونی و اپتیکی ساختارهای سه بعدی این ترکیبات مورد مطالعه قرار گرفته است [۱۷-۱۸]. اگرچه در مورد ویژگی‌های الکترونی و اپتیکی ساختارهای دوبعدی که به صورت آزمایشگاهی و با استفاده از روش رسوب دهی بخار شیمیایی سنتز شده‌اند، اطلاعات کاملی در دسترس نیست [۱۹-۲۳].

با توجه به اهمیت کاربردی این دسته از مواد در زمینه‌های بیان شده در بالا، در این پژوهش بررسی کاملی بر روی ویژگی‌های ساختاری، الکترونی و اپتیکی حالت انبوه و تک لایه ترکیبات FeX_2

($X=S, Se, Te$) صورت گرفته است. در این مقاله، ابتدا روش انجام محاسبات به طور کامل بیان شده است. در بخش اول ویژگی‌های ساختاری این ترکیبات در حالت سه بعدی (انبوهه) و دو بعدی (لایه ای) مورد مطالعه قرار گرفته و با یکدیگر مقایسه شده‌اند. در بخش دوم، ویژگی‌های الکترونی چون شکاف انرژی و نمودار چگالی حالت‌های الکترونی این ترکیبات بررسی شده است. در بخش سوم، طیف وسیعی از ویژگی‌های اپتیکی این ترکیبات گزارش و نتایج بررسی شده‌اند و در پایان نتایج حاصل از پژوهش به صورت خلاصه بیان شده است. لازم به یادآوری است که به دلیل مغناطیسی بودن ساختار ترکیبات دی‌کلکوژنید آهن، کلیه محاسبات به صورت اسپین-قطبیده انجام شده است.

۲. روش انجام محاسبات

محاسبات بر پایه نظریه تابعی چگالی و با بکارگیری روش امواج تخت به‌ساخته خطی با پتانسیل کامل (FP-LAPW) و با استفاده از کد Wien2k انجام شده است [۲۴]. برای انجام محاسبات لازم است پارامترهای اولیه مانند تعداد نقاط K در منطقه اول بریلوئن، $R_{mt}K_{max}$ و G_{max} بهینه شده و مقادیر به دست آمده برای انجام محاسبات بعدی استفاده شود. به این ترتیب، تعداد نقاط K در منطقه اول بریلوئن برای تمامی ترکیبات انبوهه و تک‌لایه به ترتیب ۵۰۰ و ۷۰۰ نقطه در نظر گرفته است. با توجه به اینکه در مطالعه ویژگی‌های الکترونی و اپتیکی تعداد نقطه‌های شبکه بیشتری مورد نیاز است، تعداد نقطه‌های K برای بخش دوم محاسبات به ترتیب به ۱۰۰۰ و ۲۰۰۰ نقطه افزایش یافته است. توابع پایه در ناحیه بین جایگاهی با مقدار $R_{mt}K_{max} = 7$ (شعاع کوچکترین کره مافین تین و K_{max} بردار موج قطع برای بسط تابع موج بر حسب امواج تخت) و برای بسط پتانسیل از پارامتر بهینه $G_{max} = 12$ استفاده شده است. بیشینه عدد کوانتومی برای بسط توابع موج که با پارامتر / نشان داده می‌شود، برابر ۱۰ در نظر گرفته شده است. برای محاسبه انرژی تبادل-همبستگی از تقریب GGA با دو تابعی پردو-بورک-انزروهوف [۲۵] و تابعی اصلاح شده بک-جانسون (GGA- mbj) [۲۶] استفاده شده است. انرژی جداسازی حالت‌های مغزه از ظرفیت برابر با $6Ry$ - انتخاب شده است. در ساختارهای تک‌لایه برای جلوگیری از برهمکنش بین لایه‌ها، ضخامت خلاء ۱۵ آنگستروم در نظر گرفته شده است. مشخصات ساختاری هر دو حالت انبوهه و تک‌لایه‌ی تمامی ترکیبات FeX_2 ($X=S, Se, Te$) در جدول (۱) و (۲) نمایش داده شده است.



جدول ۱ ساختار، گروه فضایی و شعاع کره‌های مافین تین ترکیبات انبوه FeX_2

			انبوه
$FeTe_2$	$FeSe_2$	FeS_2	ترکیب
پیریت با $u=0/3690$	پیریت با $u=0/3755$	پیریت با $u=0/3827$	ساختار
pa-3			گروه فضایی
$2/32(Fe) = R_{MT}$ $2/32(Te) = R_{MT}$	$2/20(Fe) = R_{MT}$ $2/09(Se) = R_{MT}$	$2/22(Fe) = R_{MT}$ $1/82(S) = R_{MT}$	شعاع کره مافین تین بر حسب a.u

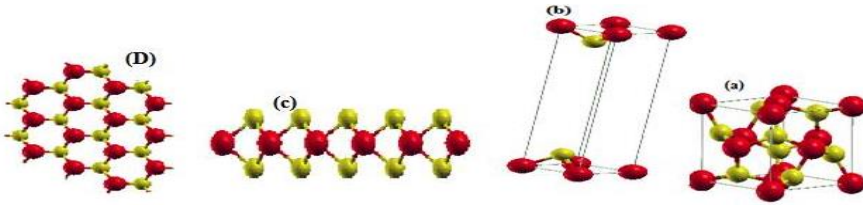
جدول ۲ ساختار، گروه فضایی و شعاع کره‌های مافین تین ترکیبات تک لایه FeX_2

$FeTe_2$		$FeSe_2$		FeS_2		ترکیب
هگزگونال						ساختار
p-6m2						گروه فضایی
$2/34(Fe) = R_{MT}$ $2/34(Te) = R_{MT}$		$2/22(Fe) = R_{MT}$ $2/11(Se) = R_{MT}$		$2/24(Fe) = R_{MT}$ $1/82(S) = R_{MT}$		شعاع کره مافین تین بر حسب a.u
محاسباتی دیگران	مطالعه حاضر	محاسباتی دیگران	مطالعه حاضر	محاسباتی دیگران	مطالعه حاضر	
$127[2/53]$ $128[2/581]$	$2/532$	$129[2/42]$ $127[2/35]$ $128[2/391]$	$2/35$	$129[2/28]$ $127[2/22]$ $128[2/251]$	$2/28$	طول نوار Fe-X (X=S,Se,Te)
$127[3/08]$	$3/083$	$127[2/87]$	$2/875$	$127[2/68]$	$2/76$	فاصله بین X-X (X=S,Se,Te)
$127[74/98]$	$74/998$	$127[75/36]$	$75/42$	$127[74/20]$	$74/53$	زاویه بین X-Fe-X (X=S,Se,Te)

۳. تجزیه و تحلیل نتایج

۳-۱ ساختار انبوه و تک لایه دی کلکوژنیدهای آهن

در شکل (۱) ساختارهای مورد مطالعه در حالت انبوه و تک لایه ترکیبات FeX_2 (X=S, Se, Te) نشان داده شده است.



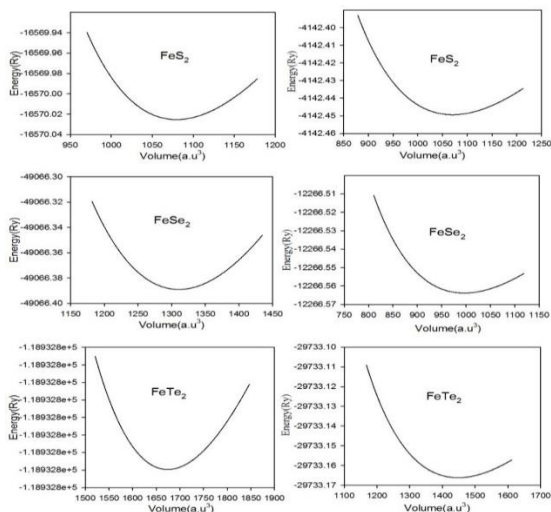
شکل ۱ (a) یاخته واحد انبوهه، (b) یاخته واحد تک لایه، (c) ساختار تک لایه از نمای کنار، (d) ساختار تک لایه از نمای بالای ترکیبات FeX_2 ، کره‌های تیره اتم Fe و کره‌های روشن اتم X.

برای یافتن ویژگی‌های ساختاری حالت پایه این ترکیبات انرژی یاخته بسیط به ازای حجم‌های مختلف اطراف حجم تعادلی محاسبه و انرژی‌های محاسبه شده را با معادله حالت مورناگان [۳۰] مطابق رابطه (۱) برازش داده و نمودار انرژی بر حسب حجم مطابق شکل (۲) را برای کلیه ترکیبات در حالت انبوهه و تک‌لایه ترسیم می‌کنیم.

$$E(V) = E_0 + \frac{B_0 V}{B'_0} \left[\frac{\left(\frac{V_0}{V}\right)^{B'_0}}{B'_0 - 1} + 1 \right] - \frac{V_0 B_0}{B'_0 - 1} \quad (1)$$

در رابطه بالا V_0 حجم یاخته واحد، E_0 انرژی حالت پایه در دما و فشار صفر، B_0 مدول حجمی و B'_0 مشتق مدول حجمی می‌باشد. همان‌طور که در شکل (۲) مشاهده می‌شود، منحنی انرژی کل بر حسب حجم برای تمامی ترکیبات در حالت انبوهه و تک‌لایه دارای کمینه است که به معنی مثبت بودن مدول حجمی و پایداری ساختار در تغییر شکل همگن می‌باشد. با استفاده از معادله مورناگان ثابت شبکه، مدول حجمی (B) و مشتق آن (B'_0) که معیارهایی از سختی بلور هستند محاسبه شده است. نتایج ویژگی‌های ساختاری تمامی ترکیبات انبوهه و تک‌لایه در جدول (۳) گزارش شده است. ثابت‌های شبکه بدست آمده برای هر سه ترکیب در حالت انبوهه و تک‌لایه بسیار نزدیک به مقادیر گزارش شده در مطالعات قبلی و مقادیر تجربی می‌باشد. مشاهده می‌شود که ثابت شبکه هر سه ساختار با افزایش عدد اتمی و شعاع یونی، افزایش می‌یابد. علاوه بر این با توجه به کاهش مقدار مدول حجمی ترکیبات با تغییر از S به Te در هر دو حالت انبوهه و تک‌لایه از سختی ساختارها کاسته می‌شود.





شکل ۲ نمودار انرژی کل بر حسب حجم ساختارهای انبوهه (سمت چپ) و تک لایه (سمت راست).

جدول ۳ مقادیر ثابت شبکه، مدول حجمی و مشتق مدول حجمی انبوهه و تک لایه ترکیبات FeX_2

تک لایه			انبوهه			مطالعه حاضر	ترکیب ثابت شبکه
FeTe ₂	FeSe ₂	FeS ₂	FeTe ₂	FeSe ₂	FeS ₂		
۳/۵۹۹	۳/۳۲	۳/۱۴	۶/۲۸۳۵	۵/۷۹۰۹	۵/۴۲۸۶	مطالعه حاضر	ثابت شبکه
$17[3/48]$ $28[3/50]$	$27[3/22]$ $28[3/25]$ $29[3/29]$	$27[3/06]$ $28[3/10]$ $29[3/15]$	$17[6/283]$ $31[6/3083]$	$17[5/786]$ $31[5/746]$	$17[5/385]$ $32[5/421]$	محاسباتی دیگران	تعادلی (A^0) انبوهه
-	-	-	۶/۲۹۳۷]۱۸[۵/۷۸۵۹]۱۸[$18[5/4182]$ $38[5/418]$	تجربی	$a=b=c$ تک لایه $a=b$ $c=15$
۱۸/۱۶۶۸	۲۶/۹۱۹۲	۳۰/۱۹۲۷	۱۰۳/۴۷۶۶	۱۲۸/۷۶۱۷	۱۶۵/۶۱۸۷	مطالعه حاضر	مدول حجمی
-	-	-	$17[113/42]$	$17[138/50]$	$17[166/87]$	محاسباتی دیگران	B(Gpa)
۵/۹۲۰۶	۵/۹۹۷۸	۵/۶۹۵۰	۷/۰۱۸۱	۵/۳۳۶۹	۷/۴۸۸۶	مطالعه حاضر	مشتق مدول
-	-	-	-	-	-	محاسباتی دیگران	حجمی $B^{\square}(p)$

جدول ۴ مقادیر کلی و جزئی گشتاور مغناطیسی انبوهه و تک‌لایه ترکیبات FeX_2 .

تک‌لایه بر حسب (μ_B)		انبوهه بر حسب (μ_B)			نام ترکیب	
مطالعه حاضر	محاسباتی دیگران	تجربی	محاسباتی دیگران	مطالعه حاضر		
۱/۴۵	$^{27}[1/12], ^{29}[1/56]$	$\mu \approx 0$ 18	-	-۰/۰۰۰۰۴	Total	FeS ₂
۱/۴۷	$^{28}[1/42], ^{29}[1/67]$			-۰/۰۰۰۱۰	Fe	
-۰/۰۲	$^{29}[-۰/۰۵]$			۰/۰۰۰۰۲	S	
۱/۸۴	$^{27}[1/18], ^{29}[1/98]$	$\mu \approx$ $^{18} 0$	-	۰/۰۰۰۰۷	Total	FeSe ₂
۱/۹۱	$^{28}[1/77], ^{29}[2/15]$			۰/۰۰۰۱۲	Fe	
-۰/۰۴	$^{29}[-۰/۰۷]$			-۰/۰۰۰۰۲	Se	
۱/۷۶	$^{27}[1/۰۸]$	$\mu \approx$ $^{18} 0$	-	-۰/۰۱۷	Total	FeTe ₂
۱/۹۶	$^{28}[1/۸۵]$			-۰/۰۰۰۴۴	Fe	
-۰/۰۷	-			۰/۰۰۰۰۱	Te	

مقادیر کلی و جزئی گشتاور مغناطیسی ترکیبات انبوهه و تک‌لایه محاسبه و در جدول (۴) گزارش شده است که در توافق خوبی با نتایج تجربی و محاسباتی پیشین می‌باشد. با توجه به مقادیر بدست آمده مشاهده می‌شود که ترکیب‌های انبوهه به علت صفر بودن مقدار گشتاور مغناطیسی کل و ویژگی مغناطیسی ندارند. در حالی که ساختارهای تک‌لایه، مغناطیسی بوده و مقدار گشتاور مغناطیسی آن‌ها برای FeS₂, FeSe₂ و FeTe₂ به ترتیب $1/45\mu_B$, $1/84\mu_B$ و $1/76\mu_B$ می‌باشد. لازم به یادآوری است که گشتاور مغناطیسی کل هر سه ترکیب تک‌لایه به طور عمده ناشی از اتم آهن موجود در ساختار می‌باشد. به دلیل مغناطیسی بودن ساختارهای تک‌لایه، تمامی محاسبات الکترونی و اپتیکی مربوط به این ساختارها به صورت اسپین قطبیده انجام شده است.

۲-۳ ویژگی‌های الکترونی انبوهه و دی‌کلکوژنیدهای آهن

ویژگی‌های الکترونی ترکیبات با استفاده از ساختار نواری و منحنی چگالی حالت‌های الکترونی قابل بررسی است. ویژگی‌های مهمی چون شکاف انرژی و توزیع ترازهای الکترونی بر حسب انرژی و روش هیبرید شدن اوربیتال‌های الکترونی را می‌توان از این نمودارها بدست آورد. شکاف انرژی به

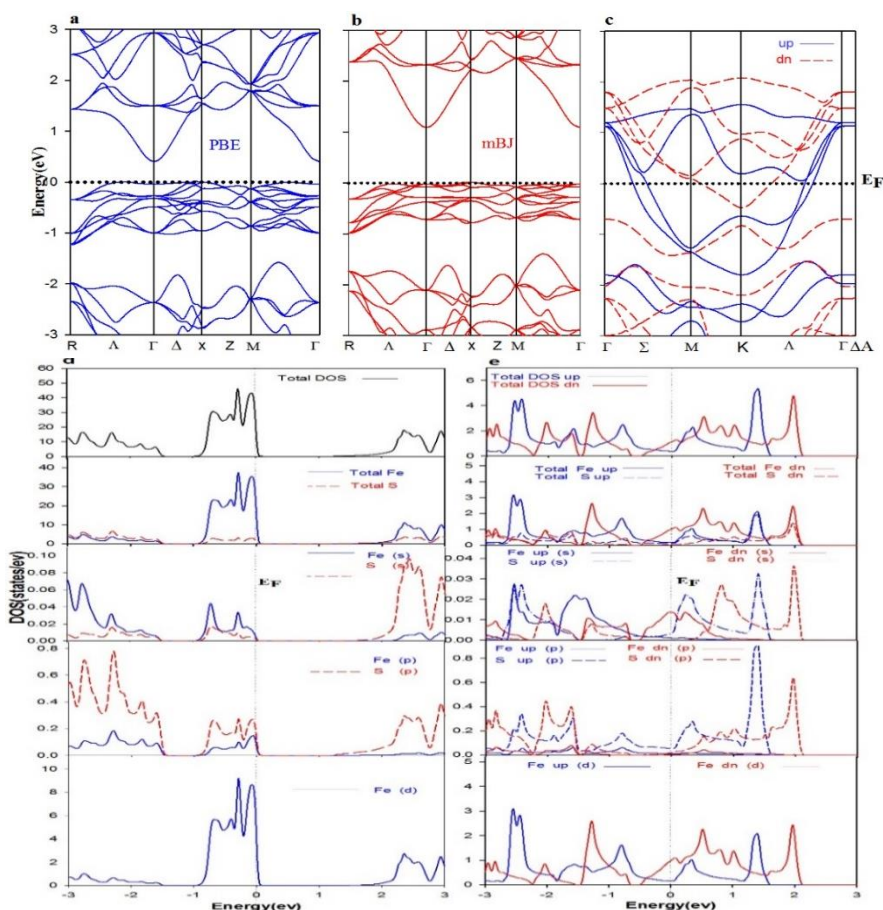


این علت که مشخص کننده‌ی نوع ماده است، مهم‌ترین شاخصه در بررسی ساختار نواری است. مقدار شکاف انرژی از تفاوت محل قرارگیری لبه‌ی کمینه نوار رسانش و لبه‌ی بیشینه نوار ظرفیت بدست می‌آید. ساختار نواری ترکیبات با استفاده از دو تقریب GGA-PBE و GGA-*mbj* محاسبه و تاثیر تابعی تبادل-همبستگی بر روی شکاف این ترکیبات بررسی شد. اثرات تغییر تابعی بر روی شکاف این ترکیبات FeX_2 در حالت انبوه در شکل (۳-۵) نشان داده شده است. نتایج نشان می‌دهد که هر سه ترکیب FeS_2 و $FeSe_2$ و $FeTe_2$ در حالت انبوه با مقادیر شکاف انرژی به ترتیب $1/248$ و $0/747$ و $0/324$ الکترون ولت، نیمه‌رسانا با شکاف مستقیم در نقطه Γ (گاما) می‌باشند. همان‌طور که مشاهده می‌شود مقادیر شکاف انرژی برای ساختارهای انبوه با تغییر تابعی از PBE به *mbj* بهبود یافته و به مقادیر تجربی نزدیک‌تر شده است. از طرفی نوع شکاف محاسبه شده با استفاده از تابعی PBE غیرمستقیم و ناسازگار با نتایج گزارش شده در مطالعات قبلی است که این ناسازگاری با استفاده از تابعی *mbj* اصلاح شده است. برای هر سه ترکیب انبوه، بیشینه نوار ظرفیت در زیر تراز فرمی قرار دارد. در حالی که کمینه نوار رسانش با تغییر ساختارها از S تا Te به سمت انرژی‌های پایین‌تر جابجا شده و منجر به کاهش شکاف انرژی ترکیبات با تغییر ساختار از S تا Te می‌شود. این کاهش مقدار شکاف انرژی به دلیل اختلاف الکترونگاتیوی بین آنیون و کاتیون‌های ترکیبات می‌باشد. به عبارت دیگر، در تغییر ساختارها از S تا Te چون اختلاف الکترونگاتیوی بین $S(2/5)$ ، $Se(2/4)$ ، $Te(2/1)$ و $Fe(1/8)$ کاهش پیدا می‌کند، شکاف انرژی نیز کم خواهد شد.

در شکل‌های (۳-۵) ساختار نواری و چگالی حالات کلی و جزئی ترکیبات بر حسب انرژی نشان داده شده است. انرژی تراز فرمی با استفاده از خط چین روی نمودار مشخص شده است. با توجه به مقادیر شکاف انرژی و صفر بودن چگالی حالت‌ها در سطح فرمی می‌توان نتیجه گرفت که تمامی ترکیبات FeX_2 در حالت انبوه دارای ویژگی نیمه‌رسانایی می‌باشند. صفر بودن مقدار شکاف نواری و غیرصفر بودن چگالی حالت‌های الکترونی در سطح فرمی نیز بیانگر ویژگی فلزی این ترکیبات در حالت دوبعدی است. منحنی چگالی حالت‌های الکترونی جزئی نشان می‌دهد که در ساختارهای انبوه بیشترین سهم اوربیتال‌ها در نزدیکی سطح فرمی مربوط به اوربیتال d اتم Fe و اوربیتال p اتم X می‌باشد. در حالی که در ساختارهای تک لایه این سهم مربوط به حامل‌های اسپین‌های بالا و پایین اوربیتال d اتم Fe و حامل‌های اسپین بالای اوربیتال p اتم X است.

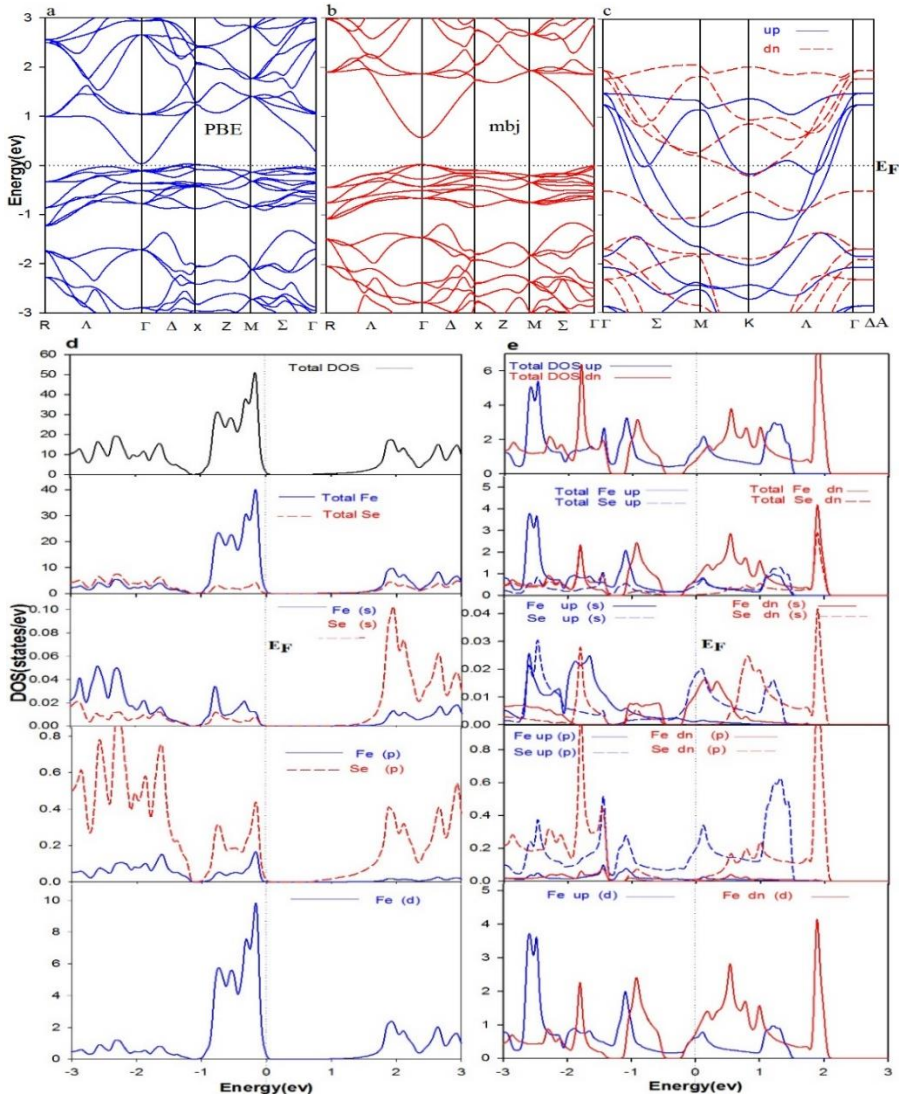
جدول ۵ شکاف انرژی بر حسب eV با تقریب‌های GGA-PBE و GGA-mbj ترکیبات انبوهه FeX₂.

تجربی	محاسباتی دیگران	مطالعه حاضر		نام ترکیب
		GGA-PBE	GGA-mbj	
[۳۷]۱/۲ [۳۵]۳۶[۰/۹۵]	[۱۷]۰/۸۸۴ [۳۲]۰/۶۱	۰/۵۸۹	۱/۲۴۸	FeS ₂
[۳۴]۱/۰۳	[۳۱]۰/۶۹۴ [۱۷]۰/۵۴۵, [۳۳]۰/۶۷	۰/۲۴۱	۰/۷۴۷	FeSe ₂
-	[۱۷]۰/۳۵۵, [۳۱]۰/۴۳۲	۰	۰/۳۲۴	FeTe ₂

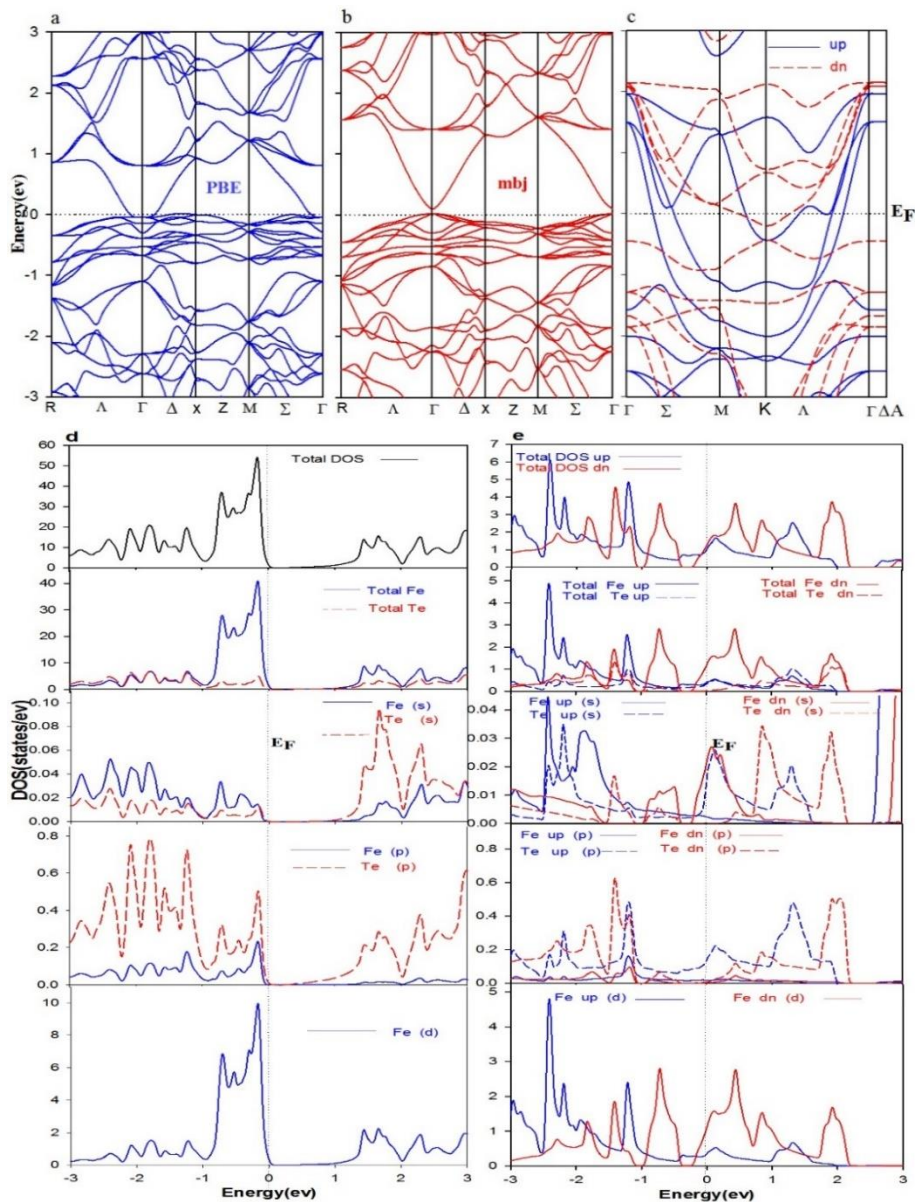


شکل ۳ ساختار نواری انبوهه با (a) تابعی PBE، (b) پتانسیل تبدیلی mbj، (c) ساختار نواری تک‌لایه، (d) چگالی حالت‌های کلی و جزئی انبوهه و (e) چگالی حالت‌های کلی و جزئی تک‌لایه برای ترکیب FeS₂.





شکل ۴ ساختار نواری انبوهه با (a) تابعی PBE، (b) پتانسیل تبدیلی mbj، (c) ساختار نواری تک لایه، (d) چگالی حالت‌های کلی و جزئی انبوهه و (e) چگالی حالت‌های کلی و جزئی تک لایه برای ترکیب $FeSe_2$. در منحنی چگالی حالت‌ها، به ترتیب از بالا به پایین، چگالی حالت کل ساختار، چگالی حالت کلی تک تک اتم‌ها، چگالی حالت جزئی مربوط به اوربیتال s هر اتم، چگالی حالت جزئی مربوط به اوربیتال p هر اتم و چگالی حالت جزئی مربوط به اوربیتال d هر اتم ترسیم شده است.



شکل ۵ ساختار نواری انبوهه با (a) تابعی PBE، (b) پتانسیل تبدیلی mBJ، (c) ساختار نواری تک لایه، (d) چگالی حالت‌های کلی و جزئی انبوهه و (e) چگالی حالت‌های کلی و جزئی تک لایه برای ترکیب FeTe_2 . در منحنی چگالی حالت‌ها، به ترتیب از بالا به پایین، چگالی حالت کل ساختار، چگالی حالت کلی تک تک اتم‌ها، چگالی حالت جزئی مربوط به اوربیتال s هر اتم، چگالی حالت جزئی مربوط به اوربیتال p هر اتم و چگالی حالت جزئی مربوط به اوربیتال d هر اتم ترسیم شده است.



۳-۳ ویژگی های اپتیکی انبوهه و دی کلکوژنیدهای آهن

تابع دی الکتریک مختلط مهم ترین پارامتر برای بیان ویژگی های اپتیکی یک ماده است که در واقع پاسخ بلور به میدان الکترومغناطیسی با بسامد ω را نشان می دهد و با معادله زیر بیان می شود [۳۹]:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega) \quad (2)$$

که در آن $\varepsilon_1(\omega)$ بخش حقیقی و $\varepsilon_2(\omega)$ بخش موهومی تابع دی الکتریک می باشد. این تابع دارای دو سهم گذارهای درون نواری و گذارهای بین نواری می باشد که گذارهای درون نواری اهمیت ویژه ای در ساختارهای فلزی دارد. با توجه به اینکه ساختارهای Fex_2 در حالت انبوهه نیمه-رسانا و در حالت تک لایه فلز هستند، در محاسبات ویژگی های اپتیکی در حالت انبوهه سهم گذارهای بین نواری و در حالت تک لایه سهم گذارهای بین و درون نواری در نظر گرفته شده است. گذارهای بین نواری دارای دو سهم گذارهای مستقیم و غیر مستقیم می باشند که از گذارهای غیر مستقیم که شامل پراکندگی فونون هاست و سهم اندکی در تابع دی الکتریک دارد چشم پوشی شده است.

با به دست آوردن قسمت موهومی تابع دی الکتریک می توان طیف گسترده ای از ویژگی های اپتیکی این ساختارها را محاسبه نمود [۳۹]:

$$\varepsilon_2(\omega) = \left(\frac{4\pi^2 e^2}{m^2 \omega^2} \right) \sum \int \langle i | M | j \rangle \langle j | M | i \rangle f_i (1 - f_i) \times \delta(E_f - E_i - \omega) d^3 k \quad (3)$$

که در این رابطه M ماتریس دوقطبی، i و j به ترتیب حالت های اولیه و نهایی، f_i تابع توزیع فرمی و E_i انرژی الکترون در حالت i می باشد. قسمت حقیقی تابع دی الکتریک، $\varepsilon_1(\omega)$ ، نیز با استفاده از رابطه کرامرز-کرونیک مطابق با معادله (۴) محاسبه می شود. بخش حقیقی تابع دی الکتریک بیانگر پراکندگی و اتلاف موج الکترومغناطیسی در بلور است به صورتی که کمینه ها محل نابودی فوتون ها و بیشینه ها محل گذارهای اپتیکی را نشان می دهند:

$$\varepsilon_1(\omega) = 1 + \frac{2}{\pi} P \int_0^\infty \frac{\varepsilon_2(\omega') \omega' d\omega'}{(\omega'^2 - \omega^2)} \quad (4)$$

در رابطه بالا P نشان دهنده قسمت اصلی انتگرال $۶۲+۳$ می باشد.

با بدست آوردن بخش های حقیقی و موهومی تابع دی الکتریک، سایر ویژگی های اپتیکی چون: ضریب جذب، بازتاب، شکست، خاموشی و طیف اتلاف انرژی نیز قابل محاسبه هستند. نخستین پارامتر اپتیکی محاسبه شده ضریب جذب ترکیبات است. جذب بر واحد طول یک محیط اپتیکی را ضریب جذب $[I(\omega)]$ می گویند و ویژگی از ماده است که میزان جذب نور توسط ماده را نشان

می‌دهد. لبه‌ی جذب قسمتی از نمودار است که ساختار شروع به جذب موج الکترومغناطیسی می‌کند، یعنی اگر انرژی فوتون‌ها بیشتر از این مقدار باشند توسط ساختار جذب می‌شوند. ضریب جذب اپتیکی با استفاده از رابطه زیر محاسبه می‌شود:

$$I(\omega) = \sqrt{2}\omega \left[(\varepsilon_1^2(\omega) + \varepsilon_2^2(\omega))^{1/2} - \varepsilon_1(\omega) \right]^{1/2} \quad (5)$$

ضریب بازتاب مشخص کننده شدت موج بازتابیده نسبت به موج فرودی می‌باشد که با استفاده از رابطه (۶) می‌توان این ضریب را تعیین نمود.

$$R(\omega) = \left| \frac{\sqrt{\varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)} - 1}{\sqrt{\varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)} + 1} \right|^2 \quad (6)$$

ضریب شکست نیز مانند ثابت دی‌الکتریک یک تابع مختلط است و از رابطه زیر بدست می‌آید:

$$\varepsilon(\omega) = n(\omega) + iK(\omega) \quad (7)$$

که در آن، $n(\omega)$ (ضریب شکست) قسمت حقیقی و $K(\omega)$ قسمت موهومی (ضریب خاموشی) می‌باشد. ضریب خاموشی، سنجشی از میزان جذب موج الکترومغناطیسی است یعنی اگر موج الکترومغناطیسی به راحتی از داخل ماده عبور کند، ضریب خاموشی کوچکی دارد و اگر پرتویی به سختی به ساختاری نفوذ کند، ماده دارای ضریب خاموشی بزرگی است.

$$n(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[(\varepsilon_1^2(\omega) + \varepsilon_2^2(\omega))^{1/2} + \varepsilon_1(\omega) \right]^{1/2} \quad (8)$$

$$K(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[(\varepsilon_1^2(\omega) + \varepsilon_2^2(\omega))^{1/2} - \varepsilon_1(\omega) \right]^{1/2} \quad (9)$$

تابع اتلاف انرژی الکترون متناسب با احتمال اتلاف انرژی E در واحد طول برای یک الکترون در حال عبور از محیط است. با توجه به رابطه (۱۰)، این تابع با قسمت موهومی تابع دی‌الکتریک رابطه عکس دارد.

$$L(\omega) = \text{Im} \frac{-1}{\varepsilon(\omega)} = \frac{\varepsilon_2(\omega)}{\varepsilon_1^2(\omega) + \varepsilon_2^2(\omega)} \quad (10)$$



رفتار مؤلفه‌های مهم اپتیکی شامل قسمت حقیقی و موهومی تابع دی‌الکتریک، ضریب جذب^۱، ضریب بازتاب^۲، ضریب شکست^۳، ضریب خاموشی^۴، ضریب رسانندگی^۵ و تابع اتلاف انرژی الکترون^۶ بر حسب انرژی در محدوده صفر تا ۳۰ الکترون ولت برای ساختارهای انبوه FeX_2 در چارچوب تقریب فاز کاتوره‌ای بررسی و نتایج در شکل (۶) گزارش شده است.

طیف‌های بدست آمده نشان می‌دهد که ویژگی‌های اپتیکی ساختارها در حالت انبوه همسانگرد بوده و در راستاهای x ، y و z رفتار یکسانی دارد. قسمت‌های حقیقی و موهومی تابع دی‌الکتریک در نمودارهای الف و ب شکل (۶) ترسیم شده‌اند. با توجه به طیف قسمت حقیقی تابع دی‌الکتریک، در نواحی غیرمجاز (بازه‌ای از انرژی که در آن مقدار ϵ_1 منفی می‌باشد) ساختارهای $FeSe_2$ ، $FeTe_2$ و $FeTe_2$ که به ترتیب عبارتند از بازه‌های انرژی (۵/۲۴-۹۵/۷۷)، (۴/۲۳-۲۰/۷۴) و (۳/۲۱-۵۵/۴۵) الکترون ولت، امواج الکترومغناطیس منتشر نمی‌شوند و بلور شفافیت خود را از دست می‌دهد. در این مناطق قسمت موهومی تابع دی‌الکتریک دارای بیشینه مقدار بوده و بیشترین جذب و بیشترین رسانندگی (به علت به وجود آمدن حفره‌ها و شرکت در رسانندگی) در این نواحی دیده می‌شود. بیشینه مقدار تابع دی‌الکتریک برای ساختارهای FeS_2 ، $FeSe_2$ و $FeTe_2$ به ترتیب عبارت از ۲/۴۴، ۲/۰۳ و ۱/۸۴ الکترون ولت رخ می‌دهد که در این نقاط، ترکیبات بیان شده بیشترین شفافیت و کمترین جذب و رسانندگی را از خود نشان می‌دهند.

همان طور که در شکل (۶- الف و ب) مشاهده می‌شود، با تغییر ساختارها از S به Te ، ریشه‌های تابع دی‌الکتریک (انرژی‌هایی که به ازای آن‌ها تابع ϵ_1 صفر می‌شود) و نقاط بیشینه ϵ_1 به سمت انرژی‌های کمتر (جابجایی قرمز) منتقل می‌شوند. این تغییرات به پایین آمدن نوارهای رسانش (کاهش شکاف انرژی) مربوط می‌شود. شکل ساختار نوار ترکیبات این موضوع را به خوبی تایید می‌کند. کمیت اپتیکی دیگری که در این قسمت مورد بررسی قرار گرفته است، طیف اتلاف انرژی الکترونی است. این طیف بیانگر میزان جذب انرژی یک پرتو الکترونی توسط الکترون‌های ترکیب هدف می‌باشد. هر یک از بیشینه‌های نمودار اتلاف انرژی الکترونی بیانگر برخوردهای کشسان یا

¹ Absorption

² Reflectivity

³ Refraction

⁴ Extinction

⁵ Conductivity

⁶ ELOSS

غیرکشسان روی داده میان پرتو فرودی و الکترون‌های درون ساختار بوده و شامل اطلاعات مفیدی در مورد چیدمان الکترونی و ساختار شیمیایی و ویژگی‌های نوری ترکیبات است. با توجه به طیف اتلاف انرژی نمایش داده شده در شکل (۶-ح)، شاخص‌ترین بیشینه در این طیف مربوط به قله پلاسמוنی است که بیانگر نوسانات دسته جمعی چگالی بار الکترونی در بلور است. این قله در مکانی واقع شده که هر دو تابع ϵ_1 و ϵ_2 دارای دامنه‌های کوچکی هستند و سایر قله‌ها مربوط به گذارهای درون نواری و برانگیختگی‌های الکترونی می‌باشند. همان‌طور که مشاهده می‌شود در ساختارهای انبوهه با تغییر عناصر از S تا Te، قله پلاسمونی به سمت انرژی‌های کمتر (جابجایی قرمز) منتقل و از شدت ساختار کاسته می‌شود. علاوه بر این با توجه به طیف ضریب خاموشی می‌توان نتیجه گرفت که مقادیر بیشینه ضریب خاموشی متناظر با صفرهای قسمت حقیقی تابع دی‌الکتریک است و در انرژی‌های بالاتر از قله پلاسمونی ضریب خاموشی به سمت صفر میل می‌کند. انرژی‌های متناظر با قله‌های پلاسمونی در تمام ساختارهای انبوهه در جدول (۶) کامل گزارش شده است.

جدول ۶ انرژی و شدت‌های متناظر با قله‌های پلاسمونی ساختارهای انبوهه ی FeX_2 .

محاسبات دیگران			انبوهه-مطالعه حاضر			
FeTe_2	FeSe_2	FeS_2	FeTe_2	FeSe_2	FeS_2	ترکیب
-	۲۱/۵۳ ^{۱۳۱}	-	۲۱/۵۹	۲۳/۹۱	۲۴/۸۳	انرژی متناظر با قله پلاسمونی (ev)
-	-	-	۱۲/۱۲	۱۳/۵۸	۲۳/۶۹	شدت قله پلاسمونی

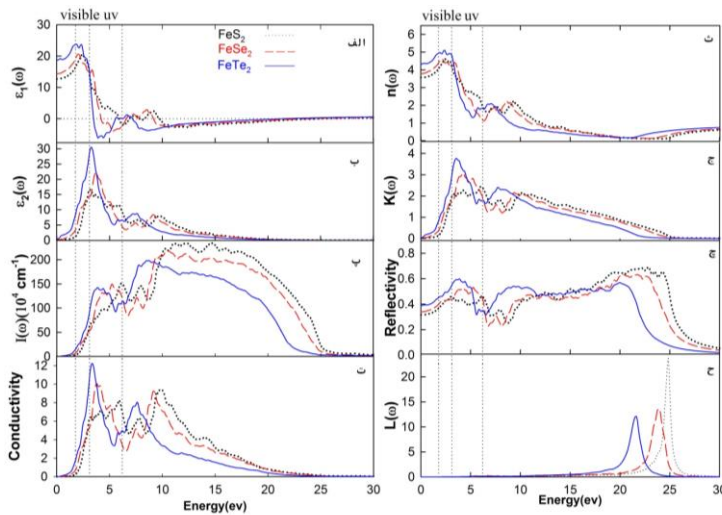
در ادامه مقادیر ثابت دی‌الکتریک استاتیک، $\epsilon_1(0)$ ، و ضریب شکست استاتیک، $n(0)$ ، برای ترکیبات FeX_2 در جدول (۷) ارائه شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود در ساختارهای انبوهه با تغییر ساختارها از S تا Te، مقادیر ثابت دی‌الکتریک استاتیک، $\epsilon_1(0)$ ، و ضریب شکست استاتیک، $n(0)$ ، افزایش پیدا کرده در حالی که شکاف انرژی (گزارش شده در جدول ۵) کاهش پیدا می‌کند. این پدیده نشان می‌دهد که ثابت دی‌الکتریک و ضریب شکست استاتیکی با شکاف انرژی که آستانه گذارهای اپتیکی است، نسبت عکس دارد.



جدول ۲ مقادیر ثابت دی الکتریک و ضریب شکست استاتیگ ساختارهای انبوهه ترکیبات FeX_2 .

محاسباتی دیگران			انبوهه-مطالعه حاضر			ترکیب
$FeTe_2$	$FeSe_2$	FeS_2	$FeTe_2$	$FeSe_2$	FeS_2	
$17 21/72$	$17 18/84$ $33 18/74$	$17 14/98$	۱۸/۷۰	۱۴/۳۶	۱۲/۷۱	$\epsilon_1(0)$
$17 4/66$	$17 4/34$ $33 4/30$	$17 3/87$	۴/۳۲	۳/۷۹	۳/۵۷	$n(0)$

در ساختارهای تک لایه ویژگی‌های اپتیکی ترکیبات FeX_2 ناهمسانگرد بوده و ساختارها در راستاهای X و Y ، ویژگی‌های یکسان و متفاوت با راستای Z از خود نشان می‌دهند (بلورهای تک محوری). طیف‌های مربوط به تمامی مولفه‌های اپتیکی ساختارهای تک لایه ترکیبات FeX_2 در چارچوب تقریب فاز کاتوره‌ای محاسبه و در شکل (۷) نمایش داده شده است. همان گونه که مشاهده می‌شود، در ساختارهای تک لایه در انرژی‌های حدود ۵-۰ الکترون ولت مولفه‌های اپتیکی xx و در انرژی‌های بالاتر تا حدود ۱۱ الکترون ولت مولفه‌های اپتیکی zz در تمامی طیف‌ها مولفه‌های غالب هستند. افزایش شدید شدت در طیف‌های اپتیکی در راستای xx در انرژی‌های کمتر از ۰/۵ الکترون ولت به واسطه گذارهای درون نواری می‌باشد.



شکل ۶ (الف) قسمت حقیقی تابع دی الکتریک، (ب) قسمت موهومی تابع دی الکتریک، (پ) ضریب جذب، (ت) رسانندگی، (ث) ضریب شکست، (ج) ضریب خاموشی، (چ) ضریب بازتاب و (ح) تابع اتلاف انرژی الکترون در ساختار انبوهه ترکیبات FeX_2 .

قسمت‌های حقیقی و موهومی تابع دی‌الکتریک ساختارهای تک لایه FeX_2 در شکل (۷-الف و ب) نشان داده شده‌اند. از آنجایی که ویژگی‌های اپتیکی ترکیبات در حالت تک لایه در دو راستای X و Z بر هم منطبق نیستند و ویژگی غیرهمسانگردی دارند، ثابت‌های دی‌الکتریک استاتیک $\epsilon_1(0)$ و ضریب شکست استاتیک $n(0)$ متفاوت (پدیده دوشکستی) در دو جهت X و Z ایجاد می‌شود. ثابت دی‌الکتریک استاتیک و ضریب شکست استاتیک ساختارهای تک لایه در دو جهت X و Z در جدول (۸) گزارش شده است. در نواحی که قسمت حقیقی تابع دی‌الکتریک دارای قله است، ساختار بیشترین شفافیت و کمترین جذب و رسانندگی را نشان می‌دهد. بیشینه‌ی قسمت حقیقی تابع دی‌الکتریک ترکیبات $FeSe_2$ و $FeTe_2$ در راستای XX به ترتیب در انرژی‌های $1/59$ و $1/29$ ، $1/10$ الکترون ولت با شدت‌های $7/27$ ، $6/77$ و $5/95$ در راستای ZZ به ترتیب در انرژی‌های $3/63$ ، $3/30$ و $1/62$ الکترون ولت با شدت‌های $4/99$ ، $5/39$ و $5/11$ رخ می‌دهد. مشاهده می‌شود که در ساختارهای تک لایه همانند ساختارهای انبوهه با تغییر ساختارها از S تا Te ، بیشینه‌ی قسمت حقیقی تابع دی‌الکتریک در هر دو راستای XX و ZZ به سمت انرژی‌های کمتر (جابجایی قرمز) منتقل می‌شوند. علاوه بر این در راستای XX با تغییر ساختارها از S تا Te ، از شدت ساختارها کاسته در حالی که در راستای ZZ روند خاصی مشاهده نمی‌شود.

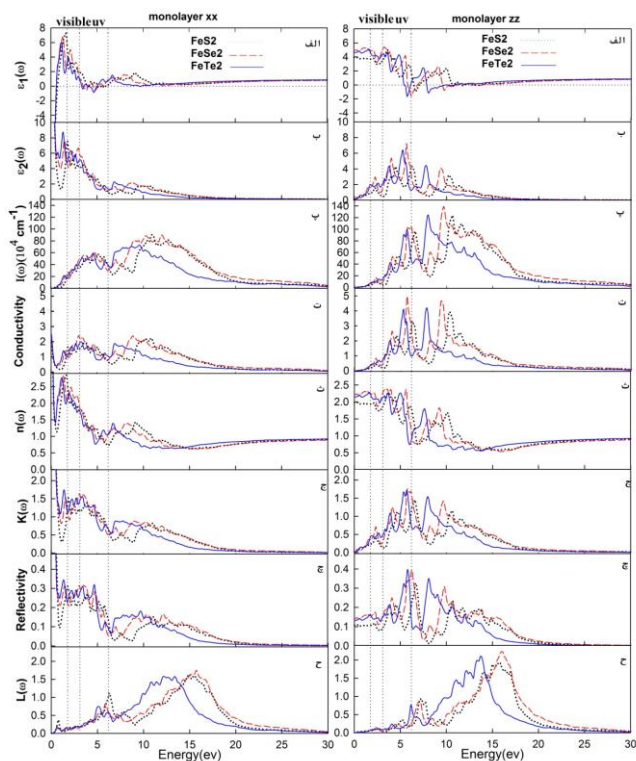
جدول ۸ مقادیر ثابت دی‌الکتریک و ضریب شکست استاتیک ساختارهای تک لایه FeX_2 .

تک لایه-مطالعه حاضر			
$FeTe_2$	$FeSe_2$	FeS_2	ترکیب
$95/8XX=-$ $4/63ZZ=$	$85/18XX=-$ $4/92ZZ=$	$73/13XX=-$ $3/92ZZ=$	$\epsilon_1(0)$
$26/90XX=$ $2/15ZZ=$	$25/45XX=$ $2/22ZZ=$	$23/53XX=$ $1/98ZZ=$	$n(0)$



جدول ۹ نواحی غیر مجاز قسمت حقیقی تابع دی الکتریک ترکیبات FeX_2 .

تک لایه-مطالعه حاضر			ترکیب
$FeTe_2$	$FeSe_2$	FeS_2	
(۰-۰/۵۹)	(۰-۰/۵۶)	(۰-۰/۶۹)	راستای XX
(۳/۳۶-۳/۵۸)	(۳/۵۲-۴/۰۴)	(۳/۹۳-۴/۱۲)	
(۴/۰۱-۴/۹۷)	(۴/۶۱-۵/۱۶)	(۵/۰۷-۵/۴۶)	
(۹/۵۹-۹/۸۱)	(۴/۶۱-۵/۱۶)	(۵/۶۴-۵/۹۴)	
(۵/۴۶-۶/۱۴)	(۵/۸۴-۶/۸۴)	(۶/۵۲-۷/۰۶)	راستای ZZ
(۷/۸۸-۹/۸۹)	(۹/۶۲-۱۱/۳۱)	(۱۰/۶۵-۱۰/۸۴)	
(۱۰/۱۹-۱۰/۸۷)	(۱۲/۶۴-۱۲/۸۹)	(۱۱/۶۱-۱۲/۰۱)	
	(۱۳/۶۵-۱۳/۸۹)	(۱۲/۹۴-۱۳/۷۶)	



شکل ۷ طیف‌های اپتیکی، راستای XX (سمت چپ) و راستای ZZ (سمت راست): (الف) قسمت حقیقی تابع دی الکتریک، (ب) قسمت موهومی تابع دی الکتریک، (پ) ضریب جذب، (ت) رسانندگی، (ث) ضریب شکست، (ج) ضریب خاموشی، (چ) ضریب بازتاب و (ح) تابع اتلاف انرژی ساختار تک لایه ترکیبات FeX_2 .

با توجه به شکل (۷-ث) مشاهده می‌شود که همه‌ی ترکیبات تک لایه FeX_2 در راستای ZZ، در ناحیه‌ی نور مرئی به طور همزمان دارای ضریب جذب و ضریب بازتاب کمابیش کمی می‌باشند (حدود ۱۰ تا ۱۵ درصد) که بدین علت می‌توانند به عنوان لایه‌ی شفاف ضد بازتاب در سلول‌های خورشیدی مورد استفاده قرار بگیرند.

در ناحیه فرابنفش، این ترکیبات به طور همزمان دارای ضریب جذب و ضریب بازتاب کمابیش بالایی می‌باشند که می‌توانند در این ناحیه به عنوان حفاظ موج الکترومغناطیس فرابنفش مورد استفاده قرار گیرند. در حالی که در راستای XX، تمامی ترکیبات تک لایه در ناحیه‌ی نور مرئی با توجه به داشتن ضریب جذب بالا و ضریب بازتاب کمابیش پایین در حدود ۲۰ تا ۳۰ درصد می‌توانند به عنوان سطوح جاذب در سلول‌های خورشیدی مورد استفاده قرار بگیرند. ضریب بازتاب استاتیک (شکل (۷-ج))، برای ترکیبات FeS_2 ، $FeSe_2$ و $FeTe_2$ در راستای XX به ترتیب ۹۲/۸۹، ۹۳/۲۷ درصد و در راستای ZZ به ترتیب ۱۰/۸۰، ۱۴/۳۳ و ۱۳/۳۶ درصد می‌باشد. همان گونه که از شکل قابل برداشت است با افزایش انرژی، ضریب بازتاب کاهش پیدا می‌کند به صورتی که ضریب بازتابندگی بعد از انرژی ۲۰ الکترون ولت صفر می‌شود. با توجه به شکل (۷-ح)، مولفه‌های XX و ZZ تابع اتلاف انرژی الکترون تمامی ترکیبات تک لایه‌ی FeX_2 رفتار تقریباً یکسانی دارند و از مقدار صفر شروع می‌شود. با افزایش انرژی موج الکترومغناطیسی فرودی، میزان اتلاف انرژی الکترون افزایش یافته و بعد از رسیدن به یک مقدار بیشینه (قله پلاسمونی) شروع به کاهش می‌کند. انرژی‌های متناظر با قله‌های پلاسمونی در تمام ساختارهای تک لایه در راستاهای XX و ZZ در جدول (۱۰) گزارش شده است. تاکنون هیچ داده تجربی و یا محاسباتی برای ویژگی‌های اپتیکی ترکیبات FeX_2 در حالت تک لایه جهت مقایسه و ارزیابی نتایج کار حاضر وجود ندارد.

جدول ۱۰ انرژی‌های متناظر با قله‌های پلاسمونی ساختارهای تک لایه FeX_2 .

تک لایه			ترکیب
$FeTe_2$	$FeSe_2$	FeS_2	
$۱۳/۳۷XX=$	$۱۵/۷۴XX=$	$۱۴/۹۵XX=$	انرژی متناظر با قله پلاسمونی بر حسب (eV)
$۱۳/۷۵ZZ=$	$۱۶/۰۴ZZ=$	$۱۵/۷۴ZZ=$	



۴. نتیجه گیری

در این پژوهش، ابتدا ویژگی‌های ساختاری، الکترونی و اپتیکی دی کلکوژنیدهای آهن در حالت انبوهه و تک لایه در چارچوب نظریه تابعی چگالی انجام شده است. نتایج به دست آمده نشان می‌دهند که ترکیبات FeX_2 در حالت انبوهه، نیمه رسانای غیرمغناطیسی با شکاف مستقیم در نقطه گاما هستند. در حالی که این ترکیبات در حالت تک لایه، فرومغناطیس بوده و ویژگی فلزی از خود نشان می‌دهند. ساختار نواری و شکاف انرژی انبوهه FeX_2 با تقریب‌های GGA-PBE و GGA-*mbj* محاسبه و مورد مقایسه قرار گرفته‌اند که تابع اصلاح شده بک جانسون نتایج بهتری را در این زمینه ارائه می‌کند. تمامی طیف‌های اپتیکی مانند قسمت حقیقی و موهومی تابع دی-الکتریک، ضریب جذب، ضریب بازتاب، ضریب شکست، ضریب خاموشی، رسانندگی و طیف اتلاف انرژی الکترون در هر دو حالت انبوهه و تک لایه محاسبه و نتایج گزارش و آنالیز شده است. نتایج نشان می‌دهد که در ناحیه فرابنفش، با توجه به اینکه ضریب جذب و ضریب بازتاب تمامی ترکیبات FeX_2 در حالت انبوهه به مراتب بیشتر از حالات تک لایه است. همچنین، با توجه به مقدار کمایش بزرگ این ضرایب، استفاده از ساختارهای انبوهه به منظور محافظ موج الکترومغناطیس فرابنفش در این ناحیه انرژی مفیدتر است. در حالی که در ناحیه مرئی با توجه به تقریباً یکسان بودن ضریب جذب و کمتر بودن ضریب بازتاب حالت تک لایه نسبت به حالت انبوهه، استفاده از ساختارهای تک لایه به منظور لایه‌های جاذب در سلول‌های خورشیدی دارای بازدهی بیشتری می‌باشد. ضریب جذب بالا و پهن در ناحیه نور مرئی و فرابنفش، این ترکیبات را گزینه‌های مناسبی برای استفاده در ابزار فوتوالکتریک و سلول‌های خورشیدی می‌کند.

منابع

- [1] Novoselov K. S., Geim A. K., Morozov S. V., Jiang D., Zhang Y., Dubonos S. V., Grigorieva I. V., and Firsov A. A., Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films, *Science*, **306**, 666-669, 2004.
- [2] Kim K. K., Hsu A., Jia X., Kim S. M., Shi Y., Hofman M., Nezich D., Rodrigues-nieva J. F., Dresselhaus M., Palacios T., and Kong J., Synthesis of monolayer hexagonal boron nitride on Cu foil using chemical vapor deposition, *Nano Letters*, **12**, 161-166, 2012.
- [3] Wang Q. H., Kalantar-Zadeh K., Kis A., Coleman J. N., and Strano M. S., Electronics and Optoelectronics of Two-Dimensional Transition Metal Dichalcogenides, *Nature Nanotechnology*, **7**, 699-712, 2012.

- [4] Li L., Chen Z., Hu Y., Wang X., Zhang T., Chen W., Wang Q., Single-Layer Single-Crystalline SnSe Nanosheets, *Journal of the American Chemical Society*, **135**, 1213-1216, 2013.
- [5] Hu J., Liu X., Yue C. L., Liu J. Y., Zhu H. W., He J. B., Wei J., Mao Z. Q., Antipina L. Y., Popov Z. I., Sorokin P. B., Liu T. J., Adams P.W., Radmanesh S. M. A., Spinu L., Ji H., Natelson D., Enhanced electron coherence in atomically thin Nb₃SiTe₆, *Nature Physics*, **11**, 471-476, 2015.
- [6] Vittal R., and Ho K. C., Zinc oxide-based dye-sensitized solar cells, *A review Renewable and Sustainable energy reviews*, **70**, 920-935, 2017.
- [7] Tan Ch., Sun D., Xu D., Tian X., Huang Y., Tuning electronic structure and optical properties of ZnO monolayer by Cd doping, *Ceramics International*, **42**, 10997-11002, 2016.
- [8] Dadsetani M., Beiranvand R., Optical properties of alkaline earth metal oxides from first principles, *Solid state sciences*, **11**, 2099-2105, 2009.
- [9] Dadsetani M., Beiranvand R., The effect of oxygen impurity on the electronic and optical properties of calcium, strontium and barium chalcogenide compounds, *Iranian Journal of Physics Research*, **10**, 187-196, 2010.
- [10] Kwon H. J., Thanikaikarasan S., Mahalingam T., Park K. H., Sanjeeviraja C., and Kim Y. D., Characterization of electrosynthesized iron diselenide thin films, *Journal of Materials Science, Materials in Electronics*, **19**, 1086-1091, 2008.
- [11] Puthussery J., Seefeld S., Berry N., Gibbs M., and Law M., Colloidal iron pyrite (FeS₂) nanocrystal inks for thin-film photovoltaics, *Journal of the American Chemical Society*, **133**, 716-719, 2011.
- [12] Tian X.H., and Zhang J.M., The structural, elastic, electronic and optical properties of orthorhombic FeX₂ (X= S, Se, Te), *Superlattices and Microstructures*, **119**, 201-211, 2018.
- [13] Lan M., Xiang G., Nie Y., Yang D., Zhang X., The static and dynamic magnetic properties of monolayer iron dioxide and iron dichalcogenides, *RSC advances*, **6**, 31758-31761, 2016.
- [14] Gokoglu G., and Ethem A., Half metallicity and pressure-induced electronic structure of monolayer FeX₂ (X = S, Se), *Materials Research Express*, **4**, 116305-116313, 2017.
- [15] Li Y., Shi J., Mi Y., Sui X., Xu H., and Liu X., Ultrafast carrier dynamics in two-dimensional transition metal dichalcogenides, *Journal of Materials Chemistry C*, **7**, 4304-4319, 2019.
- [16] Ataca C., Sahin H., and Ciraci S., Stable, single-layer MX₂ transition-metal oxides and dichalcogenides in a honeycomb-like structure, *The Journal of Physical Chemistry C*, **116**, 8983-8999, 2012.
- [17] Ghosh A., and Thangavel R., Electronic structure and optical properties of iron-based chalcogenide FeX₂ (X= S, Se, Te) for photovoltaic applications: a first principle study, *Indian Journal of Physics*, **91**, 1339-1344, 2017.
- [18] Bither T. A., Bouchard R. J., Cloud W. H., Donohue P.C., Siemons W. J., Transition metal pyrite dichalcogenides High-pressure synthesis and correlation of properties, *Inorganic Chemistry*, **7**, 2208-2220, 1968.
- [19] Lan M., Xiang G., Nie Y., Yang D., Zhang X., The static and dynamic magnetic properties of monolayer iron dioxide and iron dichalcogenides, *RSC advances*, **6**, 31758-31761, 2016.
- [20] Huang S., He Q., Chen W., Qiao Q., Zai J., and Qian X., Ultrathin FeSe₂ nanosheets: controlled synthesis and application as a heterogeneous catalyst in dyesensitized solar cells, *Chemistry—A European Journal*, **21**, 4085-4091, 2015.
- [21] Shi Y., Li H., Li L.J., Recent advances in controlled synthesis of two-dimensional transition metal dichalcogenides via vapour deposition techniques, *Chemical Society Reviews*, **44**, 2744-2756, 2015.



- [22] Bosi M., Growth and synthesis of mono and few-layers transition metal dichalcogenides by vapour techniques, *RSCAdvances*,**5**, 75500-75518, 2015.
- [23] Manzeli S, Ovchinnikov D., Pasquier D., Yazyev O.V., Kis A., 2D transition metal dichalcogenides, *Nature Reviews Materials*,**2**, 1-15, 2017.
- [24] Blaha P., Schwarz K., Madsen G.K.H., Kvasnicka D., Luitz J., WIEN2K, An Augmented Plane Wave + Local Orbitals Program for Calculating Crystal Properties, wien2k_12.1 (Release 27.02.2012)
- [25] Perdew J.P., Burke K., and Ernzerhof M. Generalized gradient approximation made simple, *Physical Review Letters*,**77**,18-28, 1996.
- [26] Tran F., Blaha P., Accurate band gaps of semiconductors and insulators with a semilocal exchange-correlation potential, *Physical review letters*,**102**, 226401, 2009.
- [27] Ataca C., Sahin H., and Ciraci S., Stable, single-layer MX₂ transition-metal oxides and dichalcogenides in a honeycomb-like structure, *The Journal of Physical Chemistry C*, **116**, 8983-8999, 2012.
- [28] Lan M., Xiang G., Nie Y., Yang D., and Zhang X., The static and dynamic magnetic properties of monolayer iron dioxide and iron dichalcogenides, *RSC Advances*,**38**,31758-31761, 2016.
- [29] Gokoglu G., and Akturk E., Theoretical investigation of lithium adsorption, diffusion and coverage on MX₂ (M= Mo, W; X= O, S, Se, Te) monolayers, *Applied Surface Science***425**, 301-306, 2017.
- [30] Tyuterev V.G., Vast N, Murnaghan's equation of state for the electronic ground state energy, *Computational material science* , **38**, 350-353, 2006.
- [31] Gudelli V. K., Kanchana V., Valtheeswaran G., Valsakumar M. C., and Mahanti S. D., Thermoelectric properties of marcasite and pyrite FeX₂(X = Se, Te): a first principle study, *RSC Advances*,**19**,9424-9431, 2014.
- [32] Zhao C., Wu B., Chen J., Li Y., and Chen Y., *International Journal of Minerals, Metallurgy and Materials*,**7**,671, 2013.
- [33] Ganga B.G., Ganeshraj C., Gopal Krishn A., and Santhosh P.N., *Iranian Journal of Physics Research*, **15**,204, 2015.
- [34] Mahalingam T., Thanikaikarasan S., Chandramohan R., Raja M., Sanjeeviraja C. , Kim J.H., Kim Y. D., Effects of bath temperature in electrodeposited FeSe₂ thin films, *Materials Chemistry and Physics*,**106**, 369-374, 2007.
- [35] Ennaoui A., Fiechter S., Pettenkofer C., Alonso-Vante N., Buker K., Bronold M., Hopfner Ch., and Tributsch H., Iron disulfide for solar energy conversion, *Solar Energy Materials and Solar Cells*,**29**, 289-370, 1993.
- [36] Schlegel A., and Wachter P, Optical properties, phonons and electronic structure of iron pyrite (FeS₂), *Journal of Physics C: Solid State Physics*,**9**, 3363-3369, 1976.
- [37] J. C. Marinace, Energy Bands in Periodic Lattices Green's Function Method, *Physical Review* ,**124**, 1786-1796, 1975.
- [38] Binxia Y., Weiling L., and Shan-tung T., One-step synthesis of cubic FeS₂ and flower-like FeSe₂ particles by a solvothermal reduction process, *Dalton transactions*, **41**, 772-776, 2012.
- [39] Ambrosch-Draxl C., and Sofo J. O., Linear optical properties of solids within the full-potential linearized augmented plane wave method, *Computer physics communications*, **175**, 1-14, 2006.

