تخمین طول عمر و طول پخش الکترون در لایه‌های نیم‌رسانای نانومتخلخل به‌روش شبیه‌سازی گشت تصادفی در دو مقیاس

فاطمه ابراهیمی*، مهلا مقدس، حکیمه کوچی

گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه بیرجند، بیرجند، ایران

دریافت: ۱۳۹٤/۰۹/۱٤ ویرایش نهائی: ۱۳۹۵/۰۵/۱۰ پذیرش: ۱۳۹۵/۰۷/۱٤

چکیده

در این پژوهش با استفاده از یک مدل دو-مقیاسی، فرآیند پخش الکترون توأم با بدام افتادن در یک لایهٔ نیم‌رسانای نانومتخلخل و با در نظرگرفتن مراکز بازترکیب شبیه‌سازی می‌شود. در مقیاس اول نقش توزیع حالت‌های جای‌گزیده از طریق تخمین زمان ماندگاری الکترون در هر نانوذره، با توجه به تعداد و آرایش همسایه‌های اول آن، محاسبه شده و در مقیاس دوم الکترون روی یک خوشهٔ تراوش کننده بی‌نظم از نانوذرات پخش می‌شود. زمان ماندگاری الکترون در هر نانوذره به تعداد همسایگان اول آن بستگی دارد که در مقیاس اول محاسبه شده است. برخی از نانوذرات این خوشه با احتمال از پیش تعریف شده‌ای دارای مراکز بازترکیب هستند. نتایج شبیه‌سازی‌های ما نشان می‌دهند که مدل دو-مقیاسی در عین حال که سرعت محاسبات را به‌شدت افزایش می‌دهد، تخمین درستی از روند تغییر ضریب پخش برحسب تخلخل، که در تطابق با مشاهدات تجربی است ارائه می‌دهد.

کلیدواژگان: مدل دو-مقیاسی، لایه نیم‌رسانای نانومتخلخل، روش گشت تصادفی، زمان ماندگاری الکترون، طول عمر الکترون، طول پخش الکترون

مقدمه

امروزه استفاده از نسل جدید ابزارهای فوتوولتائیک در تولید انرژی‌های تجدیدپذیر بسیار مرسوم شده است. اساس کار ابزارهای فوتوولتائیک عبور نور و فرآیند جدایی بار از لایهٔ میانی دو ماده با مکانیزم رسانش متفاوت و در نتیجه تبدیل مستقیم نور خورشید به الکتریسته است. نسل سوم سلول‌های خورشیدی به‌ویژه سلول‌های رنگدانه‌ای نمونهٔ بارز ابزارهای فوتوولتائیک به‌شمار می‌روند [۱].

در سلول‌های رنگدانه‌ای یک لایه نیم‌رسانای نانوساختار مانند TiO_2 بین دو الکترود رسانای شفاف محدود شده است و از آنجا که اغلب از نیم‌رساناهای با باند ممنوعه بزرگ استفاده می‌شود، مولکول‌های رنگدانه فوتون‌های نور را جذب و الکترون را به تراز رسانش نانوذرات نیم‌رسانا انتقال می‌دهند.

کارایی سلول نسبت مستقیمی با درصد جذب فوتون و درصد انتقال الکترون‌ها به مدار خارجی، که متأثر از فرآیند ترابرد الکترونی است، دارد. ترابرد الکترونی در این لایه‌ها که از طریق فرآیند پخش در شبکه‌ای از نانوذرات صورت می‌گیرد، توسط توزیع گسترده ترازهای انرژی در باند ممنوعه نانوذرات نیم‌رسانا و فرآیند بازترکیب محدود می‌شود. به‌دلیل پوشش میدان الکتریکی، ترابرد الکترون در این سامانه تنها از طریق فرآیند پخش[1] انجام می‌گیرد [۲].

* نویسنده مسئول: f_ebrahimi@birjand.ac.ir

[1]Diffusion

ضریب پخش الکترون، عامل بسیار مهمی برای توصیف ترابرد الکترون و در نتیجه کارایی سلول‌های خورشیدی رنگدانه‌ای به‌شمار می‌رود. در روش‌های شبیه‌سازی می‌توان ضریب پخش را از شیب نمودار مربع جابجایی الکترون–زمان ترابرد تخمین زد [٦–٢].

$$D_j = \frac{1}{4} < \frac{r^2}{t} > \qquad ۱$$

رابطهٔ ۱ برای یک شبکه دو بعدی است که در آن t زمان ترابرد و r^2 مربع جابجایی الکترون است.

یک روش شبیه‌سازی دقیق و البته بسیار زمان بر، روش گشت تصادفی با مدل ریز–مقیاس[1] است که توسط آنتا و همکاران توسعه یافته است [٦]. از آنجا که در این مواد، توزیع گسترده‌ای از ترازهای انرژی با شبکه‌ای نامنظم از نانوذرات درهم آمیخته است، در این روش، نقش هر دو عامل آرایش هندسی نانوذرات و توزیع انرژی حالت‌های جای‌گزیده و اثر متقابل آنها بر یکدیگر به‌صورت هم‌زمان در نظر گرفته می‌شود. البته باید در نظر داشت که تعداد حامل‌های بار و نانوذرات نیم‌رسانا در یک فیلم واقعی بسیار زیاد است. هر نانوذره نیز شامل تعداد بسیار زیادی تله‌های جایگزیده است. همچنین الکترون به‌دلیل حرکت‌های تصادفی در کل مسیر خود ممکن است بارها به یک نانوذره خاص وارد شود. این شرایط که در تمام نمونه‌های آماری مختلف تکرار می‌شوند، حجم محاسبات را در یک مدل شبیه‌سازی واقعی به‌شدت بالا می‌برد. استفاده از تکنیک‌هایی چون شرایط مرزی دوره‌ای، در نظر گرفتن توزیع قطع شده حالت‌های انرژی و استفاده از مدل تک الکترون هرچند بسیار مفیداند [۸و۷]، اما زمان اجرای برنامه‌ها همچنان زیاد است.

پیشنهاد ما در اینجا استفاده از یک مدل دو–مقیاسی است [۹]. در این مدل، ابتدا زمان توقف الکترون در حالت‌های جایگزیده موجود در یک نانوذره منفرد و با در نظر داشتن آرایش هندسی همسایگان اول آن محاسبه می‌شود. سپس، با تکرار نمونه‌های آماری مختلف، توزیع زمان توقف الکترون در یک نانوذره برحسب پارامترهای متفاوت تخمین زده می‌شود [۱۰]. در مقیاس بعدی از یک مدل درشت–دانه[2] برای لایه نانوساختار استفاده می‌شود. به‌این ترتیب که هر نانوذره به‌صورت یک مرکز به‌دام اندازی الکترون و با زمان توقفی که از توزیع آماری مقیاس اول استخراج شده است، در نظر گرفته می‌شود. استفاده از مدل درشت‌دانه برای اولین بار توسط بنکنشتاین و همکاران برای مطالعه ویژگی‌های ساختار هندسی بر ترابرد الکترون مطرح شده است. در این مدل، زمان توقف الکترون، به سادگی، کمیتی ثابت و مستقل از همسایه‌های یک نانوذره فرض شده است که بر اساس اطلاعات تجربی مقداری برای آن پیشنهاد می‌شود [۱۱].

در عمل، الکترون‌ها با رسیدن به برخی تله‌ها با احتمال مشخصی ممکن است دستخوش بازترکیب و نابودی شوند. گانزالز–وازکوئز و همکاران برای مطالعه این فرآیند از یک مدل ریزمقیاس به‌روش چند الکترون استفاده کردند [۱۲و۵]. با تخمین میانگین مربعی جابجایی الکترون قبل از بازترکیب یا در اصطلاح مربع طول پخش $< L_r^2 >$، و زمان بازترکیب الکترون یا همان طول عمر الکترون $< \tau_r >$، ضریب پخش به‌صورت زیر محاسبه می‌شود [۵]:

$$D_0 = < \frac{L_r^2}{\tau_r} > \qquad ۲$$

این روش نیز مانند هر روش ریز–مقیاس دیگری زمان‌بر است به‌طوری که تنها یک دور اجرای کد شبیه‌سازی به‌روش چند الکترونی نیاز به ٤٠ ساعت

[1] Fine-Scale

[2] Coarse-Grain

زمان CPU دارد [۵]. در این پژوهش هدف ما آن است که نشان دهیم با بازنگری در مدل دو-مقیاسی می‌توانیم دینامیک پخش الکترون را از روش بسیار سریع‌تری تخمین بزنیم. در واقع، برای در نظر گرفتن اثر بازترکیب در مدل دو-مقیاسی، فرآیند بازترکیب را با توجه به احتمال وقوع آن می‌توان در هر یک از دو مقیاس بررسی کرد. با این وجود با توجه به احتمال‌های استخراج شده از مقالات علمی [۱۲]، به‌دلیل کوچک بودن نرخ بازترکیب واقعی، زمان متوسط بین دو رویداد بازترکیب متوالی قابل مقایسه با زمان ماندگاری الکترون در نانوذرات است و بنابراین می‌توان آن را در مقیاس دوم وارد کرد.

در این مقاله ابتدا جزئیات روش پیشنهادی یعنی روش دو-مقیاسی تشریح خواهد شد و پس از آن وابستگی طول عمر، طول پخش و ضریب پخش الکترون به تخلخل لایهٔ نیم‌رسانای نانوساختار تخمین زده می‌شود. همان‌طور که خواهیم دید این روش علاوه بر کاهش بسیار چشم‌گیر حجم محاسبات [۹]، توصیف درستی از روند تغییرات ضریب پخش برحسب تخلخل شبکه نانوساختار ارائه می‌دهد و بنابراین روش بسیار سریع و قابل اطمینانی برای تخمین بستگی ضریب پخش الکترون به ویژگی‌های میکروسکوپی و ماکروسکوپی ماده است.

کلیات شبیه‌سازی دو-مقیاسی

در مقیاس اول با در نظر گرفتن یک نانوذرهٔ مرکزی و همسایه‌های اول آن (با پیکربندی‌های مختلف)، متوسط زمان ماندگاری الکترون در هر نانوذره $<\tau_n>$، تخمین زده می‌شود. توزیع فضایی تله‌ها را می‌توان توزیعی سطحی (مدل R^2) یا توزیعی حجمی (مدل R^3) در نظر گرفت. توزیع انرژی تله‌ها معمولاً به‌صورت نمایی در نظر گرفته می‌شود [۸-۱]:

$$g(E) = \frac{N_L}{K_\beta T_0}\exp\left(\frac{E-E_0}{K_\beta T_0}\right) \qquad ۳$$

در رابطهٔ بالا، $K_\beta T_0$ پهنای توزیع تله‌ها و E_0، لبه پایین باند رسانش($E<0$) است. N_L نیز چگالی تله‌ها در نوار ممنوعه نیم‌رساناست. الکترون در هر گام به‌صورت تصادفی در یکی از تله‌های مجاور تا شعاع مشخص r_{cut} به دام می‌افتد و بعد از سپری شدن یک زمان نامعین، موسوم به زمان رهایی مشخصه تله، جهش تصادفی دیگری را انجام می‌دهد. برای توزیع زمان رهایی معمولاً از یک توزیع لگاریتمی استفاده می‌شود [۸-۲]:

$$t_i = t_0 \ln(R)\exp\left(\frac{E-E_0}{K_\beta T_0}\right) \qquad ٤$$

در رابطهٔ بالا، t_0 برابر با عکس ν_0 بسامد جهش الکترون است که خود به مکانیزم رهایی الکترون، که غالباً اندرکنش الکترون-فونون است، بستگی دارد. R نیز یک عدد تصادفی بین ۰ و ۱ است.

جدول۱. مقادیر کمیت‌های ثابت در کد شبیه‌سازی برای هر دو مقیاس.

$d(nm)$	۱۹
$E_0(ev)$	۰
$K_\beta T_0(ev)$	۰٫۰۷۸
$t_0(s)$	۵×۱۰$^{-۱۳}$
$r_{cut}(nm)$	۲٫۵
$N_L(nm^{-3})$	۱
α	۰٫٤۰۳
P_C	۰٫۵

در یک نمونهٔ مشخص، زمان ماندگاری الکترون برای نانوذره‌ای با n همسایه، از مجموع زمان رهایی از تله‌ها در N_J گام تصادفی بین تله‌های نانوذره مرکزی محاسبه می‌شود [۱۰]:

$$\tau_n = \sum_{j=1}^{N_J} t_i \qquad ۵$$

روند شبیه‌سازی روی ۱۰۰۰۰ نمونهٔ آماری مختلف تکرار شده و در نهایت $< N_J >$، متوسط تعداد جهش‌ها و $< \tau_n >$ متوسط زمان ماندگاری الکترون محاسبه می‌شود. این کمیت برای یک نانوذره با اندازه مفروض، به تعداد همسایه‌های آن از یک سو و مدل توزیع تله‌ها (سطحی یا حجمی) از سوی دیگر بستگی دارد [۱۰]. در واقع، نتایج شبیه‌سازی حاکی از آن است که تعداد همسایه‌ها مستقل از جهت‌گیری فضایی آنها، عامل بسیار تأثیرگذاری بر زمان ماندگاری و تعداد گام‌های پیموده شده الکترون در یک نانوذره است و همان‌طور که انتظار می‌رود با افزایش تعداد همسایگان زمان ماندگاری الکترون کاهش می‌یابد. در جدول۲، میانگین زمان ماندگاری برای ذراتی به قطر ۱۹nm با اعداد همارایی مختلف نشان داده شده است.

در مقیاس دوم ابتدا یک شبکه هندسی نامنظم از نانوذرات به‌کمک اصل تراوش جایگاهی[1] ساخته می‌شود [۱۳،۱٤] سپس الکترون به‌صورت تصادفی روی خوشهٔ تراوش‌کننده قرار گرفته و حرکت گشت تصادفی بین نانوذرات را انجام می‌دهد. در این مرحله، زمان رهایی از هر نانوذره با توجه به نتایج مقیاس اول انتخاب می‌شود. به‌عبارتی برای نانوذرات با عدد همارایی n، زمان $< \tau_n >$ مربوطه، به‌صورت یک پارامتر ثابت در کد شبیه‌سازی تعریف می‌شود. در هر گام گشت تصادفی الکترون در یک نانوذره به‌دام افتاده و بعد از سپری شدن مدت زمان به اندازه $< \tau_n >$ از آن خارج و به‌طور تصادفی به یکی دیگر از همسایه‌های اولش، که روی خوشهٔ تراوش‌کننده قرار دارد، می‌رود. خوشهٔ تراوش‌کننده یک مسیر پر پیچ و خم در اختیار الکترون گذاشته و این احتمال وجود دارد که الکترون بارها بین چند نانوذره مشخص حرکت رفت و برگشت انجام دهد. این حالت به‌ویژه در زمانی که الکترون به یک مسیر بن‌بست[2] یا نانوذره‌ای با عدد همارایی یک می‌رسد، بسیار اهمیت داشته و زمان ترابرد را بسیار طولانی می‌کند. الکترون به حرکت گشت تصادفی بین نانوذرات ادامه داده و در نهایت از طریق بازترکیب نابود می‌شود.

جدول۲. تغییرات میانگین زمان ماندگاری الکترون در یک نانوذره برحسب n عدد همارایی نانوذره مرکزی از مقیاس اول و برای دو مدل توزیع سطحی (مدل R^2) و حجمی تله‌ها (مدلR^3)[۱۰]. در هر مورد روی تمام جهت‌گیری‌های فضایی n همسایه و برای تمام نمونه‌های آماری متفاوت میانگین‌گیری انجام شده است. $< \tau_n >$ برحسب t_0 که برابر با عکس بسامد جهش الکترون بین ترازهای انرژی است بیان شده است.

n	$< \tau_n > (t_0)$	
	مدل R^2	مدل R^3
۱	۸۰۸٫۸٤	٤٥٧٫۳٥
۲	۳٥٥٫۳۳	۲۷۳٫۱٥
۳	۲٤٤٫۳٤	۲۰٦٫۹٥
٤	۱۷۹٫۰۹	۱۷٥٫۳٥
٥	۱٤۹٫۰٤	۱٥٥٫۱۱
٦	۱۲۰٫۷٥	۱٤۲٫۷٥
۷	۱۱۲٫٤۳	۱۳۰٫٤۸
۸	۱۰۰٫۲۰	۱۲۷٫٦۸

برای در نظر گرفتن اثر بازترکیب الکترون در یک تله باید این نکته را در نظر داشت که بازترکیب الکترون تابعی از دو نرخ احتمال است: اول، احتمال اینکه تله هدف مرکز بازترکیب کننده باشد و دوم، احتمال اینکه الکترون در آن مرکز بازترکیب دست‌خوش فرآیند بازترکیب و نابودی قرار گیرد. بنا بر گزارش‌های موجود معمولاً از هر ٦٤۰۰۰ تله در کل فیلم یکی مرکز بازترکیب است [٥،۱۲]. با فرض اینکه در مقیاس اول به‌طور متوسط در هر nm ۱ یک تله جای‌گزیده شده باشد و با توجه به مقادیر کمیت‌های اولیه مورد استفاده در کد شبیه‌سازی (جدول۱)، در اینجا به‌طور میانگین هر نانوذره شامل ۳٥۸٤ تله در سطح و یا حجم خود است. بنابراین با توجه به تعداد بسیار کم مراکز بازترکیب، ساده‌تر است که بازترکیب را در مقیاس دوم

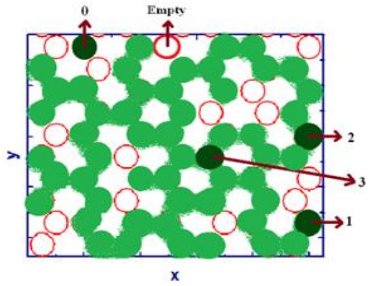
[1]Site-Percolation

[2]Dead End

وارد نموده و به‌جای تله بازترکیب کننده از مفهوم نانوذره بازترکیب کننده استفاده شود. بدین منظور در ساده‌ترین حالت، از هر ۱۶ نانوذره در شبکه، یکی به‌صورت تصادفی به‌عنوان نانوذره بازترکیب کننده تعریف شده است. الکترون با رسیدن به این نانوذرات به احتمال ۰٫۰۵ درصد ممکن است دستخوش بازترکیب قرار گرفته و نابود شود [۸]. در صورتی‌که فرآیند بازترکیب در نانوذره بازترکیب کننده روی ندهد، الکترون به حرکت گشت تصادفی خود همچنان ادامه می‌دهد. در اینجا، حداکثر تعداد جهش‌هایی که برای حرکت گشت تصادفی فرض شده، ۱۵۰۰۰۰ گام است. طبق بررسی‌های ما، این تعداد گام آنقدر بزرگ هست که در صورت عدم بازترکیب، الکترون به شرایط پخش عادی برسد. در پخش عادی الکترون نمودار مربع جابجایی-زمان ترابرد خطی است [۲،۶].

لازم به‌ذکر است که قبل از شروع فرآیند گشت تصادفی، برای کاهش زمان اجرای برنامه، ابتدا لیست همسایه‌های اول هر نانوذره ذخیره می‌شود. آنگاه الکترون به‌صورت تصادفی روی یکی از نانوذرات خوشهٔ تراوش کننده قرار گرفته و حرکت گشت تصادفی را شروع می‌کند. فرض می‌شود که مکان اولیه الکترون دارای مرکز بازترکیب نیست.

شکل۱. بخشی از شبکه تراوش کننده نامنظم در مقیاس دوم. دایره‌های توپر نانوذراتی را نشان می‌دهد که با احتمال معینی که بالاتر از P_C، حد آستانه تراوش جایگاهی شبکهٔ شانه عسلی است، جایگاه‌های شبکهٔ اولیه را اشغال کرده و یک خوشه تراوش‌کننده را شکل داده‌اند. دایره‌های توخالی جایگاه‌های شبکهٔ شانه عسلی است که طبق اصل تراوش جایگاهی خالی مانده‌اند. برای چند نانوذره (با رنگ متفاوت و تیره‌تر) عدد همارایی نیز روی شکل مشخص شده است.



در مقیاس دوم، برای هر نمونهٔ آماری، τ_r طول عمر الکترون، از ضرب کردن مقدار $<\tau_n>$ یا زمان ماندگاری الکترون در c_n تعداد دفعاتی که الکترون به نانوذره‌ای با عدد همارایی n (که برای شبکه شانه عسلی بین ۱ تا ۳ است) رفته است، محاسبه می‌شود:

$$<\tau_r>=<\sum_{n=1}^{3} c_n <\tau_n> \qquad ٦$$

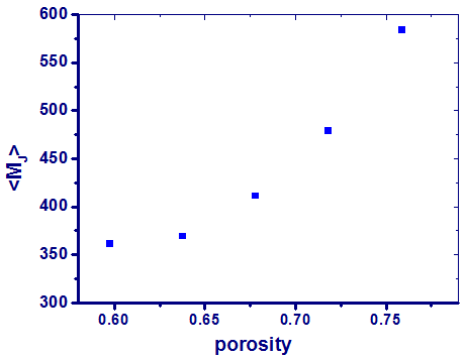
این میانگین‌گیری روی ۱۰۰۰۰ نمونه مختلف انجام شده است. به‌علاوه پس از محاسبه میانگین جابجایی الکترون، $<L_r>$ که معرف طول پخش است، ضریب پخش الکترون مطابق رابطهٔ۲ به‌دست می‌آید.

تحلیل نتایج شبیه‌سازی

در اینجا محاسبات بر روی یک جعبه دو بعدی به‌طول ۶۰ نانوذره در ۶۰ نانوذره و با در نظر گرفتن شرایط مرزی دوره‌ای در تمام مرزها انجام می‌شود (شکل۱). فرض می‌شود نانوذرات به‌صورت شبکه براوه لانه زنبوری در کنار یکدیگر قرار گرفته‌اند و شبکه‌هایی با تخلخل‌های مختلف مورد بررسی قرار گرفته است. طبق نظریه تراوش جایگاهی، هر جایگاه شبکهٔ لانه زنبوری می‌تواند با احتمال P توسط یک نانوذره اشغال شده و یا با احتمال 1-P خالی بماند [۱۳]. برای آنکه یک خوشهٔ تراوش کننده تشکیل شود احتمال P باید از مقدار P_C که حد آستانهٔ تراوش جایگاهی در شبکهٔ لانه زنبوری است، بیشتر باشد. تمام نانوذرات هم‌اندازه و هم‌شکل و بدون همپوشانی در نظر گرفته شده‌اند. با توجه به کروی بودن نانوذرات، میزان تخلخل هر شبکه تابعی از مقدار P، یا همان کسر پرشدگی، و α حجم اشغال شده توسط نانوذراتی به قطر d است که در یاخته اولیه شبکه شانه عسلی به‌صورت تصادفی قرار گرفته‌اند [۱۳،۱۵]. لازم به یادآوری است که در اینجا پخش الکترون در یک تک

لایه دو بعدی شبیه‌سازی شده است که مقدار تخلخل آن عبارت است از:

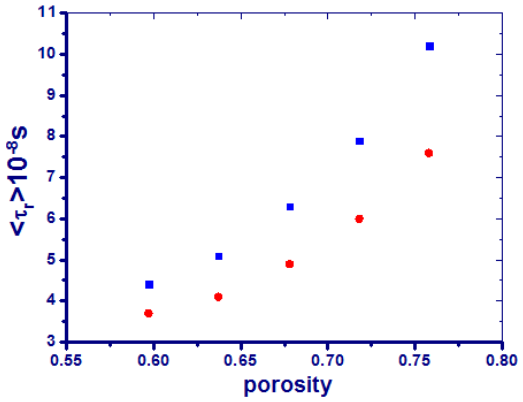
$$porosity = 1 - \alpha P \qquad ۷$$



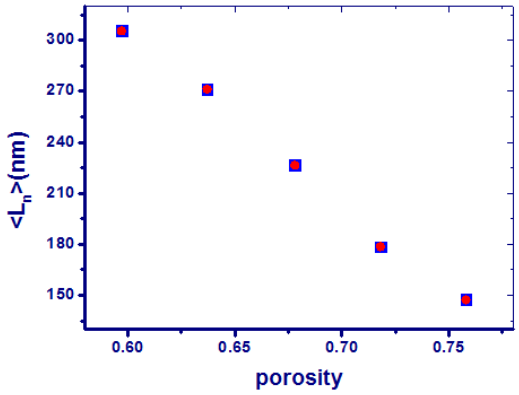
شکل۲. میانگین تعداد جهش‌های الکترون روی خوشهٔ تراوش کننده در مقیاس دوم. تعداد جهش‌ها مستقل از توزیع تله‌ها است.

شکل۲ میانگین گام‌های برداشته شده قبل از بازترکیب، $< M_J >$، را به‌صورت تابعی از تخلخل نشان می‌دهد. از شکل معلوم است که با افزایش تخلخل شبکه، تعداد گام‌ها زیاد می‌شود. این امر را می‌توان به طولانی شدن مسیر حرکت الکترون با افزایش تخلخل نسبت داد. به‌بیان دقیق‌تر، با افزایش تخلخل، کسر پرشدگی و میانگین عدد همارایی نانوذرات کاهش یافته در نتیجه مسیرهایی که پخش روی آن انجام می‌شود پیچ و خم بیشتری پیدا می‌کنند که این باعث افزایش میانگین جهش‌های الکترون در لایهٔ نیم‌رسانا می‌شود. این مسأله به‌ویژه در تخلخل‌های کوچک که در آنها تعداد نانوذراتی که تنها دارای یک همسایهٔ اول هستند (جایگاه‌های بن بست) زیادتر است، مشهودتر است.

در شکل۳ نیز تغییرات کمیت $< \tau_r >$ برحسب تخلخل نمایش داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود با افزایش تخلخل، $< \tau_r >$ روندی صعودی دارد. این ویژگی از یک سو به طولانی بودن مسیرهای پیموده شده در تخلخل‌های پایین، مطابق آنچه در بالا گفته شد، و از سوی دیگر به افزایش $< \tau_n >$، زمان متوسط ماندگاری الکترون در هر نانوذره، به‌دلیل کم شدن عدد همارایی (مطابق جدول۱) مرتبط می‌شود. همچنین نقش توزیع سطحی و یا حجمی تله‌ها بر طول عمر بازترکیب در این شکل به‌خوبی دیده می‌شود. در مدل R^2 (توزیع سطحی تله‌ها)، زمان طول عمر الکترون بزرگ‌تر از مدل R^3 (توزیع حجمی تله‌ها) است. توضیح این نکته ضروری است که تعداد متوسط جهش‌ها روی خوشهٔ تراوش‌کننده مستقل از توزیع تله‌هاست و تفاوت مشاهده شده به‌دلیل تفاوت در زمان ماندگاری الکترون، $< \tau_n >$، در دو مدل است. در توزیع سطحی تله‌ها، الکترون از طریق سطح نانوذرات پخش شده و به‌طور متوسط مسیرهایی طولانی‌تری برای نفوذ به نانوذرات مجاور در اختیار الکترون قرار دارد.



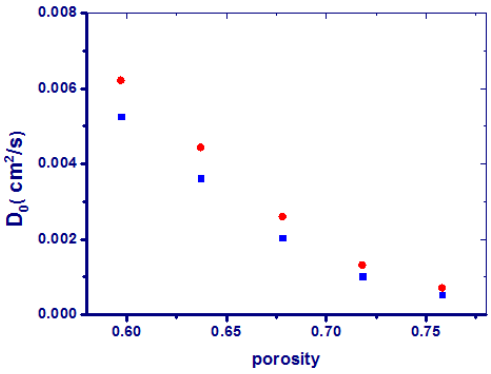
شکل۳. تغییرات طول عمر الکترون برحسب تخلخل، به‌ترتیب دایره قرمز مدل حجمی و مربع آبی مدل سطحی تله‌ها را نشان می‌دهند.



شکل٤. تغییرات طول پخش الکترون برحسب تخلخل، به‌ترتیب دایره قرمز مدل حجمی و مربع آبی مدل سطحی تله‌ها را نشان می‌دهند.

همچنین شکل٤ روند تغییرات $< L_r >$ برحسب تخلخل را نشان می‌دهد. همان‌گونه که ملاحظه می‌شود، هر چند با افزایش تخلخل نمونه، طول مسیر حرکت الکترون بیشتر می‌شود، اما چون الکترون حرکت‌های رفت و برگشت متعددی برای پیدا کردن راه خروج انجام می‌دهد (بویژه وقتی در مسیرهای بن‌بست گرفتار می‌شود) طول پخش الکترون که معرف جابه‌جایی کل است، مطابق شکل٤ کاهش می‌یابد.

در نهایت ضریب پخش D_0 که از رابطهٔ۲ به‌دست می‌آید، در شکل۵ برحسب تخلخل برای دو توزیع سطحی و حجمی تله‌ها رسم شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، با افزایش تخلخل ضریب پخش کاهش می‌یابد. این روند با روندهای مشاهده شده در آزمایشگاه و همچنین نتایج حاصل از محاسبات ریزمقیاس سازگار است [٦،٧،١١]. این در حالی است که زمان محاسبات در مدل پیشنهادی ما نسبت به محاسبات ریز–مقیاس کاهش چشمگیری داشته است [٩]. اجرای کد شبیه‌سازی مقیاس اول برای تمام ١٠٠٠٠ نمونه آماری، به‌طور میانگین ٢٤ ساعت زمان می‌برد. این کد روی یک کامپیوتر معمولی اجرا شده است و زمان اجرا بسته به تعداد همسایه‌ها و آرایش تله‌ها می‌تواند کمی تغییر کند. اما اجرای کد مقیاس دوم بسیار کوتاهتر و برای تمام ١٠٠٠٠ نمونه آماری حدود ٣ ساعت زمان‌بر است. که البته با آرایش هندسی نانوذات، ابعاد و چند بعدی بودن شبکه این زمان متغیر است. از مقایسه این زمان‌ها با آنچه در مقالات اشاره شده است [٨–٥] کاملاً روشن است که اجرای کد دو–مقیاسی در مقایسه با مدل ریزمقیاس به‌شدت در حجم محاسبات صرفه‌جویی می‌کند. محاسبات ما حاکی از آن است که روند کاهشی ضریب پخش با افزایش تخلخل، برای حالتی که هیچ مرکز بازترکیبی در شبکه نباشد نیز برقرار است.



شکل۵. تغییرات ضریب پخش الکترون از طریق بازترکیب (فرمول۲) به‌ترتیب دایره قرمز مدل حجمی و مربع آبی مدل سطحی تله‌ها را نشان می‌دهند.

جمع‌بندی

در این مقاله ما با وارد کردن احتمال بازترکیب الکترون در یک مدل دو–مقیاسی طول عمر و طول پخش الکترون در نیم‌رساناهای نانوساختار را به‌صورت تابعی از تخلخل آن محاسبه کرده و از روی آنها تابعیت ضریب پخش به میزان تخلخل ماده را تخمین زده‌ایم. نتایج به‌دست آمده نشان می‌دهند که روند تغییرات پیش‌بینی شده با این روش در توافق با نتایج محاسبات دقیق‌تر و یا تجربی است. با توجه به فراگیر شدن استفاده از لایه‌های نیم‌رسانای نانومتخلخل در تکنولوژی و پژوهش‌های نوین، کاربست مدل پیشنهادی دو–مقیاسی همراه با در نظر گرفتن فرآیند بازترکیب می‌تواند به‌عنوان روشی جایگزین برای پیش‌بینی تقریبی اما بسیار سریع بستگی فرآیند پخش الکترون در نیم‌رساناهای نانومتخلخل به ویژگی‌ها و پارامترهای میکروسکوپی مانند توزیع فضایی تله‌ها و ویژگی‌های ماکروسکوپی ماده مانند تخلخل آن به‌کار رود.

مرجع‌ها

[1] M. Gratzel, Review dye-sensitized solar cells, *Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews* **4** (2003) 145–153.

[2] J. Bisquert, Physical electrochemistry of nanostructured devices, *Physical Chemistry Chemical Physics* ***10*** (2008) 49–72.

[3] J. Nelson, Continuous-time random-walk model of electron transport in nanocrystalline TiO_2 electrodes, *Physical Review B* ***59*** *23* (1999) 15374-15380.

[4] J.A. Anta, J. Nelson, N. Quirke, Charge transport model for disordered materials: Application to sensitized TiO_2, *Physical Review B* ***65*** (2002) 125324-125334.

[5] J.A. Anta, I. Mora-Ser, T. Dittrich, J. Bisquert, Interpretation of diffusion coefficients in nanostructured materials from random walk numerical simulation, *Physical Chemistry Chemical Physics* ***10*** (2008) 4478–4485.

[6] J.A. Anta, V. Morales-Florez, Combined effect of energetic and spatial disorder on the trap-limited electron diffusion coefficient of metal-oxide nanostructures, *Physical Chemistry C* ***112*** (2008) 10287–10293.

[7] M. Ansari-Rad, Y. Abdi, E. Arzi, Monte carlo random walk simulation of electron transport in dye-sensitized nanocrystalline solar cells: influence of morphology and trap distribution, *Physical Chemistry C* ***116*** (2012) 3212−3218.

[8] J.P. Gonzalez-Vazquez, J.A. Anta, J. Bisquert, Determination of the electron diffusion length in dye-sensitized solar cells by random walk simulation: compensation effects and voltage dependence, *Physical Chemistry C* ***114*** (2010) 8552–8558.

[9] F. Ebrahimi, H. Koochi, A two-scale method for fast estimation of the charge-carrier diffusion coefficient in nano-porous semi-conductors, *Physics: Condensed Matter* ***29*** (2017) 025901-025906.

[10] H. Koochi, F. Ebrahimi, Geometrical effects on the electron residence time in semiconductor nano-particles, *Chemical Physics* ***141*** (2014) 094702-094708.

[11] K.D. Benkstein, N. Kopidakis, J. van de Lagmaat, A.J. Frank, Influence of the percolation network geometry on electron transport in dye- sensitized titanium dioxide solar cells, *Physical Chemistry B* ***107*** (2003) 7759-7767.

[12] J.P. Gonzalez-Vazquez, *random walk numerical simulation of electron dynamics in solar cells based on disordered materials*, Ph.D. Thesis, Sevilla, De Julio Del, (2012).

[13] D. Stauffer, A. Aharony, *Introduction to Percolation Theory*, Taylor & Francis: London, Washington DC, (1992).

[14] A. Ofir, S. Dor, L. Grinis, A. Zaban, T. Dittrich, J. Bisquert, Porosity dependence of electron percolation in nanoporous TiO_2 layers, *Chemical Physics* ***128*** (2008) 1-9.

[15] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, *Solid state physics*, Saunders College, New York, (1976).

Estimation of electron diffusion length and life-time in nano-porous semi-conductors with a two-scale random walk method

Fatemeh Ebrahimi*, Mahla Moghadas, Hakimeh Koochi

Department of Physics, Faculty of Science, University of Birjand, Ahvaz, Iran

Received: 05.12.2015 Final revised: 31.07.2016 Accepted: 05.10.2016

Abstract

In this study, we modified the two-scale method proposed by Ebrahimi and Koochi to simulate electron diffusion in a disordered nano-structured semiconductor and study the effect of recombination process in localized traps, on electron transport. In the first scale, we estimate the mean electron residence time for nano particles with an arbitrary coordination number. In the second scale, we estimate the electron lifetime when it travels through a disordered percolating cluster of nano particles. The electron residence time on each particle was evaluated in the first scale. Some of the nano particles have recombination centers. We find that while employing the two-scale method decreases the computational time drastically, it produces the correct dependence of diffusion coefficients on the material's porosity.

Keywords: Two-scale model, Porous semiconductor film, Random walk, Residence time of electron, Lifetime of electron, Diffusion length of electron

* Corresponding Author: f_ebrahimi@birjand.ac.ir