

ISSN 2616-6836

Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университетінің

ХАБАРШЫСЫ

BULLETIN

of the L.N. Gumilyov Eurasian
National University

ВЕСТНИК

Евразийского национального
университета имени Л.Н. Гумилева

ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ сериясы

PHYSICS. ASTRONOMY Series

Серия **ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ**

№2(123)/2018

1995 жылдан бастап шығады

Founded in 1995

Издается с 1995 года

Жылына 4 рет шығады

Published 4 times a year

Выходит 4 раза в год

Астана, 2018

Astana, 2018

Бас редакторы
ф.-м.ғ. докторы
А.Қ. Арынгазин (Қазақстан)

Бас редактордың орынбасары

А.Т. Ақылбеков, ф.-м.ғ.д., профессор
(Қазақстан)

Редакция алқасы

Алдонгаров А.А.	PhD (Қазақстан)
Балапанов М.Х.	ф.-м.ғ.д., проф. (Ресей)
Бахтизин Р.З.	ф.-м.ғ.д., проф. (Ресей)
Гиниятова Ш.Г.	ф.-м.ғ.к. (Қазақстан)
Даулетбекова А.Қ.	ф.-м.ғ.к. (Қазақстан)
Ержанов Қ.К.	ф.-м.ғ.к., PhD (Қазақстан)
Жұмаділов Қ.Ш.	PhD (Қазақстан)
Здоровец М.	ф.-м.ғ.к. (Қазақстан)
Қадыржанов Қ.К.	ф.-м.ғ.д., проф. (Қазақстан)
Кайнарбай А.Ж.	ф.-м.ғ.к. (Қазақстан)
Кутербеков Қ.А.	ф.-м.ғ.д., проф. (Қазақстан)
Лушик А.Ч.	ф.-м.ғ.д., проф. (Эстония)
Морзабаев А.К.	ф.-м.ғ.к. (Қазақстан)
Мырзақұлов Р.Қ.	ф.-м.ғ.д., проф. (Қазақстан)
Нұрахметов Т.Н.	ф.-м.ғ.д., проф. (Қазақстан)
Сауытбеков С.С.	ф.-м.ғ.д., проф. (Қазақстан)
Тлеукенов С.К.	ф.-м.ғ.д., проф. (Қазақстан)
Усеинов А.Б.	PhD (Қазақстан)

Редакцияның мекенжайы: 010008, Қазақстан, Астана қ., Сатпаев к-сі, 2, 408 б.
Тел.: (7172) 709-500 (ішкі 31-428)
E-mail: vest_phys@enu.kz

Жауапты хатшы, компьютерде беттеген:
А. Нұрболат

Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университетінің хабаршысы.
ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ сериясы

Меншіктенуші: ҚР БжҒМ "Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті" ШЖҚ РМК
Мерзімділігі: жылына 4 рет.

Қазақстан Республикасының Ақпарат және коммуникациялар министрлігімен
тіркелген. 27.03.2018ж. №16999-ж тіркеу куәлігі.

Тиражы: 20 дана

Типографияның мекенжайы: 010008, Қазақстан, Астана қ., Қажымұқан к-сі, 12/1,
тел.: (7172)709-500 (ішкі 31-428)

Editor-in-Chief
Doctor of Phys.-Math. Sciences
A.K. Aryngazin (Kazakhstan)

Deputy Editor-in-Chief

A.T. Akilbekov, Doctor of Phys.-Math. Sciences,
prof. (Kazakhstan)

Editorial board

Aldongarov A.A.	PhD (Kazakhstan)
Balapanov M.Kh.	Doctor of Phys.-Math. Sciences, prof. (Russia)
Bakhtizin R.Z.	Doctor of Phys.-Math. Sciences, prof. (Russia)
Dauletbekova A.K.	Candidate of Phys.-Math. Sciences, PhD (Kazakhstan)
Giniyatova Sh.G.	Candidate of Phys.-Math. Sciences (Kazakhstan)
Kadyrzhanov K.K.	Doctor of Phys.-Math. Sciences, prof. (Kazakhstan)
Kainarbay A.Zh.	Candidate of Phys.-Math. Sciences (Kazakhstan)
Kuterbekov K.A.	Doctor of Phys.-Math. Sciences, prof. (Kazakhstan)
Lushchik A.	Doctor of Phys.-Math. Sciences, prof. (Estonia)
Morzabayev A.K.	Candidate of Phys.-Math. Sciences (Kazakhstan)
Myrzakulov R.K.	Doctor of Phys.-Math. Sciences, prof. (Kazakhstan)
Nurakhmetov T.N.	Doctor of Phys.-Math. Sciences, prof. (Kazakhstan)
Sautbekov S.S.	Doctor of Phys.-Math. Sciences, prof. (Kazakhstan)
Tleukenov S.K.	Doctor of Phys.-Math. Sciences, prof. (Kazakhstan)
Useinov A.B.	PhD (Kazakhstan)
Yerzhanov K.K.	Candidate of Phys.-Math. Sciences, PhD(Kazakhstan)
Zdorovets M.	Candidate of Phys.-Math. Sciences (Kazakhstan)
Zhumadilov K.Sh.	PhD (Kazakhstan)

Editorial address: 2, Satpayev str., of.408, Astana, Kazakhstan, 010008
Tel.: (7172) 709-500 (ext. 31-428)
E-mail: vest_phys@enu.kz

Responsible secretary, computer layout:
A.Nurbolat

Bulletin of the L.N. Gumilyov Eurasian National University.
PHYSICS. ASTRONOMY Series

Owner: Republican State Enterprise in the capacity of economic conduct "L.N. Gumilyov Eurasian National University"

Ministry of Education and Science of the Republic of Kazakhstan

Periodicity: 4 times a year

Registered by the Ministry of Information and Communication of the Republic of Kazakhstan.

Registration certificate №16999-ж from 27.03.2018.

Circulation: 20 copies

Address of printing house: 12/1 Kazhimukan str., Astana, Kazakhstan 010008;

tel.: (7172) 709-500 (ext. 31-428)

Главный редактор
доктор ф.-м.н.
А.К. Арынгазин (Казахстан)

Зам. главного редактора

А.Т. Акилбеков, доктор ф.-м.н.
профессор (Казахстан)

Редакционная коллегия

Алдонгаров А.А.	PhD (Казахстан)
Балапанов М.Х.	ф.-м.н., проф. (Россия)
Бахтизин Р.З.	ф.-м.н., проф. (Россия)
Гиниятова Ш.Г.	кандидат ф.-м.н. (Казахстан)
Даулетбекова А.К.	кандидат ф.-м.н., PhD (Казахстан)
Ержанов К.К.	кандидат ф.-м.н., PhD (Казахстан)
Жумадилов К.Ш.	доктор PhD (Казахстан)
Здоровец М.	к.ф.-м.н. (Казахстан)
Кадыржанов К.К.	ф.-м.н., проф. (Казахстан)
Кайнарбай А.Ж.	кандидат ф.-м.н. (Казахстан)
Кутербеков К.А.	доктор ф.-м.н., проф. (Казахстан)
Лущик А.Ч.	ф.-м.н., проф. (Эстония)
Морзабаев А.К.	кандидат ф.-м.н. (Казахстан)
Мырзакулов Р.К.	доктор ф.-м.н., проф. (Казахстан)
Нурахметов Т.Н.	доктор ф.-м.н., проф. (Казахстан)
Сауытбеков С.С.	доктор ф.-м.н., проф. (Казахстан)
Тлеукенов С.К.	доктор ф.-м.н., проф. (Казахстан)
Усеинов А.Б.	PhD (Казахстан)

Адрес редакции: 010008, Казахстан, г. Астана, ул. Сатпаева, 2, каб. 408
Тел.: (7172) 709-500 (вн. 31-428)
E-mail: vest_phys@enu.kz

Ответственный секретарь, компьютерная верстка:
А. Нурболат

Вестник Евразийского национального университета имени Л.Н. Гумилева.
Серия ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ

Собственник РГП на ПХВ "Евразийский национальный университет имени Л.Н. Гумилева" МОН РК

Периодичность: 4 раза в год

Зарегистрирован Министерством информации и коммуникаций Республики Казахстан.

Регистрационное свидетельство №16999-ж от 27.03.2018г.

Тираж: 20 экземпляров

Адрес типографии: 010008, Казахстан, г. Астана, ул. Кажимукана, 12/1,
тел.: (7172)709-500 (вн. 31-428)

Л.Н. ГУМИЛЕВ АТЫНДАҒЫ ЕУРАЗИЯ ҰЛТТЫҚ УНИВЕРСИТЕТІНІҢ
ХАБАРШЫСЫ. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ сериясы

№2(123)/2018

МАЗМҰНЫ

ФИЗИКА

<i>Амангелді Н., Темербаев А.А., Аймаганбетов А.С., Мәуей Б., Көк Е., Ергалиұлы Ғ., Ақылбекова А.А., Жұмасейіт А.Ғ.</i> Ядролық физика эксперименттеріне жұқа қатты мақсаттарды қабылдау және қолдану	8
<i>Амангелді С.О., Корольков И.В., Здоровец М.В.</i> Мембраналық дистилляция процесіне арналған тректі мембраналарды кремний нанобөлшектерімен түрлендіру	15
<i>Жұмадилов Қ.Ш., Абышев Б.К., Оразалина И.С., Иса Ж.Қ.</i> Тіс эмалін ЭПР әдісімен зерттеу арқылы уранөндіруші кәсіпорын қызметкерлерінің ішкі альфа-сәулелену дозасын бағалау	21
<i>Ыбыраев Н.С., Усеинов А.Б., Ақылбеков А.Т., Здоровец М.В., Оралбеков Н.Б., Дукенов А.Б.</i> CRYSTAL бағдарламасын қолдана отырып ZnO-дағы зарядталған дефектілерді <i>ab-initio</i> есептеулер	27
<i>Ыбыраев Н.С., Усеинов А.Б., Ақылбеков А.Т., Здоровец М.В., Дукенов А., Оралбеков Н.Б.</i> ZnO кристалдарындағы акцепторлық қоспалардың зарядты өтілу деңгейлері. Бірінші қағидалардан есептеулер.	33
<i>Саттинова З.К., Жапбасбаев У.К., Рамазанова Г.И., Асылбеков Б.К., Омирбаева А.О.</i> Бериллий тотығы ұнтағы мен шликерлік құю әдісімен бериллий керамикасын алудың технологиялық ерекшеліктері	41
<i>Тогабаев Е.Т., Өтепбергенова Л.М., Молдабаева Г.Н.</i> Минералданған суды тұссыздандырудың технологиялық сұлбасын өңдеу және қондырғының инженерлік есебінің материалдық балансын құрастыру	50

BULLETIN OF L.N. GUMILYOV EURASIAN NATIONAL UNIVERSITY. PHYSICS.
ASTRONOMY SERIES

№2(123)/2018

CONTENTS

PHYSICS	
<i>Amangeldi N., Temerbayev A.A., Aimagambetov A.S., Mauey B., Kok Ye., Yergaliuly G., Akylbekova A.A., Zhumasseit A.G</i> Producing and application of thin solid targets for nuclear physics experiments	8
<i>Amangeldi S.O., Korolkov I.V., Zdorovets M.V.</i> Modification of Track Membranes by Silicon Nanoparticles for Membrane Distillation	15
<i>Zhumadilov K.Sh., Abyshv B.K., Orazalina I.S., Isa Zh.K.</i> Estimates of doses of internal alpha-irradiation of uranium mining enterprise personnel by using EPR spectroscopy of tooth enamel	21
<i>Ybyraev N.S., Usseinov A.B., Akilbekov A.T., Zdorovets M.V., Oralbekov N.B., Dukenov A.B.</i> Ab-initio calculation of charged defects in ZnO using the program CRYSTAL	27
<i>Ybyrayev N.S., Usseinov A.B., Akylbekov A.T., Zdorovets M.V., Dukenov A.B., Oralbekov N.B.</i> Levels of the charge transition of acceptor impurities in ZnO crystals. Calculations from the first principles.	33
<i>Sattinova Z.K., Zhapbasbaev U.K., Ramazanova G.I., Asilbekov B.K., Omirbayeva A.O.</i> Technological peculiarities of obtaining of powders BeO and beryllium ceramics by method of casting slurry	41
<i>Togabayev E.T., Utepbergenova L.M., Moldabayeva G.N.</i> Development of technological desalination schememineralized water and material balance for engineering calculation of the installation	50

ВЕСТНИК ЕВРАЗИЙСКОГО НАЦИОНАЛЬНОГО УНИВЕРСИТЕТА
ИМЕНИ Л.Н.ГУМИЛЕВА. Серия ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ

№2(123)/2018

СОДЕРЖАНИЕ

ФИЗИКА	
<i>Амангелді Н., Темербаев А.А., Аймаганбетов А.С., Мәуей Б., Көк Е., Ергалиұлы Ғ., Ақылбекова А.А., Жұмасейіт А.Ғ.</i> Получение и применение тонких твердотельных мишеней для ядерно-физических экспериментов	8
<i>Амангелди С.О., Корольков И.В., Здоровец М.В.</i> Модификация трековых мембран наночастицами кремния для мембранной дистилляции	15
<i>Жумадилов К.Ш., Абышев Б.К., Оразалина И.С., Иса Ж.К.</i> Оценки доз внутреннего альфа-облучения персонала уранодобывающего предприятия по эмали зубов методом ЭПР спектроскопии	21
<i>Ыбыраев Н.С., Усеинов А.Б., Ақылбеков А.Т., Здоровец М.В., Оралбеков Н.Б., Дукенов А.Б.</i> Ab-initio вычисления заряженных дефектов в ZnO с использованием программы CRYSTAL	27
<i>Ыбыраев Н.С., Усеинов А.Б., Ақылбеков А.Т., Здоровец М.В., Дукенов А.Б., Оралбеков Н.Б.</i> Уровни зарядового перехода акцепторных примесей в кристаллах ZnO. Расчеты из первых принципов	33
<i>Саттинова З.К., Жапбасбаев У.К., Рамазанова Г.И., Асылбеков Б.К., Омирбаева А.О.</i> Технологические особенности получения BeO и бериллиевой керамики методом шликерного литья	41
<i>Тогабаев Е.Т., Утепбергенова Л.М., Молдабаева Г.Н.</i> Разработка технологической схемы обессоливания минерализованных вод и составление материального баланса для инженерного расчета установки	50

Н.С. Ыбыраев¹, А.Б. Усеинов^{1,2}, А.Т. Акылбеков¹, М.В. Здоровец², Н.Б. Оралбеков¹, А.Б. Дукенов¹

¹ Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан

² Астанинский филиал Института ядерной физики, Астана, Казахстан

(E-mail: ybyraevn@mail.ru, useinov_85@mail.ru, akilbek_ata@mail.ru, zdorovets_mv@enu.kz, adletd95@mail.ru, nurastana96@mail.ru)

***Ab-initio* вычисления заряженных дефектов в ZnO с использованием программы CRYSTAL**

Аннотация: в работе проведены *ab-initio* расчеты в приближении ЛКАО с использованием программы CRYSTAL14 для заряженных дефектов в оксиде цинка. Показано, что при высокой концентрации дефектов (близком расположении дефектов) наблюдается недооценка энергии образования в связи со значительной делокализацией заряда в ячейке кристалла. Включение коррекции смещения и дефект-дефектного взаимодействия улучшают показания в сравнении с энергией образования в большой суперячейке. Однако, как показали исследования, также необходимо учитывать ковалентные размеры примесных атомов в дефект-дефектном взаимодействии. Полученные результаты лежат в хорошем согласии с предыдущими теоретическими работами, в которых использовались другие методики вычисления и способны качественно описывать энергетические характеристики дефектов.

Ключевые слова: заряженные дефекты, *ab-initio* расчеты, энергия образования, примесный атом, коррекция смещения, дефект-дефектное взаимодействие.

Введение. В последние годы стало возможным достаточно точно рассчитывать энергии образования дефектов в кристаллических твердых телах с использованием *ab initio*-методологий. Хотя расчет незаряженных дефектов относительно простой, расчет заряженных дефектов имеет более сложный характер [1]. В данной работе мы представляем результаты расчетов энергий образования заряженных дефектов в оксиде цинка, используя программу CRYSTAL. Полное описание предложенного метода можно найти в работе [2]. Используемые подходы могут быть применены и в других программах, выполняющие неэмпирические расчеты.

Наши вычисления выполнены на примере системы оксида цинка с внедренными одиночными заряженными атомами азота (N) и фосфора (P). Данные примеры были выбраны неслучайно, так как сегодня внедрение акцепторных примесей и получение эффективного полупроводника р-типа представляет большой научный интерес, поскольку такой материал потенциально может использоваться в оптоэлектронике, к примеру, как р-электрод светодиода.

Детали расчетов. Все вычисления выполняются с применением программы CRYSTAL [3]. Эта программа вычисляет электронную структуру кристаллических систем с использованием методов Хартри-Фока, функционала плотности (DFT) и различных гибридных аппроксимаций в сочетании с базисом (набором) локальных гауссовских функций для периодических (3D, 2D) и точечных (1D) систем.

Для описания атомных орбиталей атомов кристалла ZnO были выбраны следующие полноэлектронные базисные наборы функций типа Гаусса: 8-411d1G для атома O и 86-411d31G для атома Zn [4], 7-311G [5] для атома N, и rob_TZVP [6] для атома P. Для достижения высокой точности самосогласования по кулоновскому перекрыванию, кулоновскому проникновению, обменному перекрыванию, первому обменному псевдоперекрыванию, и второму обменному псевдоперекрыванию были выбраны достаточно малые пределы сходимости 10⁻⁷, 10⁻⁷, 10⁻⁷, 10⁻⁷, 10⁻¹⁴, соответственно. Эффективные заряды атомов были рассчитаны с помощью анализа заселенности Малликена [7].

В работе использован гибридный обменно-корреляционный функционал PBE0 [8]. Как было показано ранее, этот функционал обеспечивает надежное описание геометрической, электронной структуры и энергетики в широком спектре материалов [9, 10]. В частности, гибридные функционалы, такие как PBE0, обеспечивают гораздо лучшее предсказание

запрещенной зоны полупроводников, чем приближение локальной плотности или обобщенных градиентных функционалов DFT.

Энергия формирования дефектов. энергия образования дефекта D с зарядом q в системе X определяется как

$$E_f = E_{tot}(D) - E_{tot}(X) + \sum_i n_i \mu_i + q(E_F - E_V) \quad (1)$$

где $E_{tot}(D)$ и $E_{tot}(X)$ - полные энергии системы с дефектом и без него. n_i представляет число атомов элемента i , которые удаляются из системы при образовании дефекта (отрицательное значение для n_i означает добавление атомов). μ_i - химический потенциал элемента i , он представляет собой энергию атомов, которые удаляются (или добавляются) в систему, когда образуется дефект. Четвертый член $q(E_F - E_V)$ представляет собой изменение электронной энергии за счет обменного взаимодействия. $(E_F - E_V)$ - энергия Ферми относительно максимума валентной зоны бездефектной системы.

Коррекция «смещения» полной энергии. Следствием использования периодических граничных условий в расчетах электронной структуры является то, что граничные условия приводят к условной сходимости кулоновского потенциала. В случае незаряженных систем, потенциал и полная энергия сходятся к хорошо определенным значениям в условиях, впервые описанных Эвальдом [11]. Однако полная энергия заряженной системы может быть рассчитана только до некоторой постоянной смещения [1]. Величина этого смещения зависит от среднего потенциала кристалла. Смещение можно получить, вычислив изменение полной энергии нейтральной системы при удалении электрона из нее. С увеличением размера системы, разница сходит к постоянному значению смещения. Изменение энергии с увеличением размера суперячеек ZnO до и после удаления электрона показано на рисунке 1. По мере того, как размер системы стремится к бесконечности, разница в энергии сходит к приблизительно до значения 7.2 эВ. Значение $E_{tot}(D)$ в уравнении 1 включает в себя данное смещение и должно быть скорректировано при вычислении энергии образования дефекта.

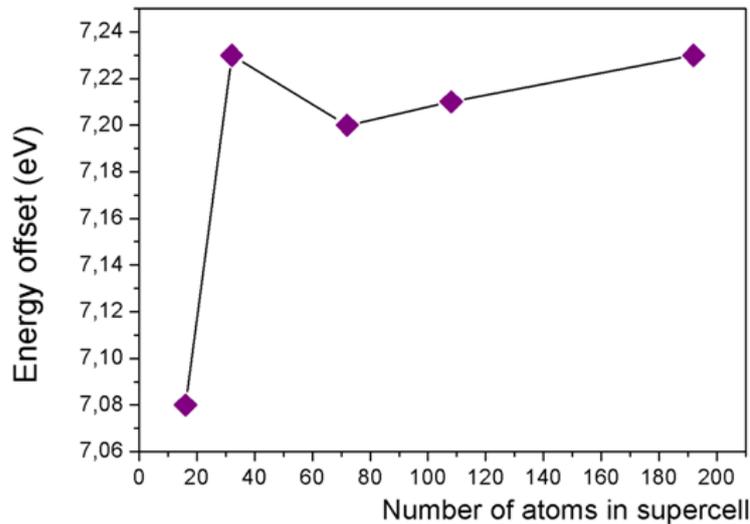


Рисунок 1 – Изменение энергии незаряженной системы ZnO при удалении электрона.

Кулоновские взаимодействия между дефектами. Полная энергия периодической системы, которая содержит локализованный заряженный дефект, включает в себя дефект-дефектное кулоновское взаимодействие, взаимодействие «дефект – кристаллическая решетка» и взаимодействие «кристаллическая решетка – кристаллическая решетка». Чтобы вычислить энергию образования изолированного дефекта, энергию данных взаимодействий необходимо вычесть из $E_{tot}(D)$. Все три взаимодействия можно аппроксимировать многополюсной коррекцией Макова-Пэйна (Makov-Payne) [12]:

$$\Delta E = \frac{q^2 \alpha_M}{2\epsilon_r V^{1/3}} + \frac{2\pi q Q}{3\epsilon_r V} + O(V^{-5/3}) \quad (2)$$

где α_M - зависящая от решетки постоянная Маделунга, ϵ_r - относительная диэлектрическая постоянная, V - объем ячейки, а Q - квадрупольный момент дефекта.

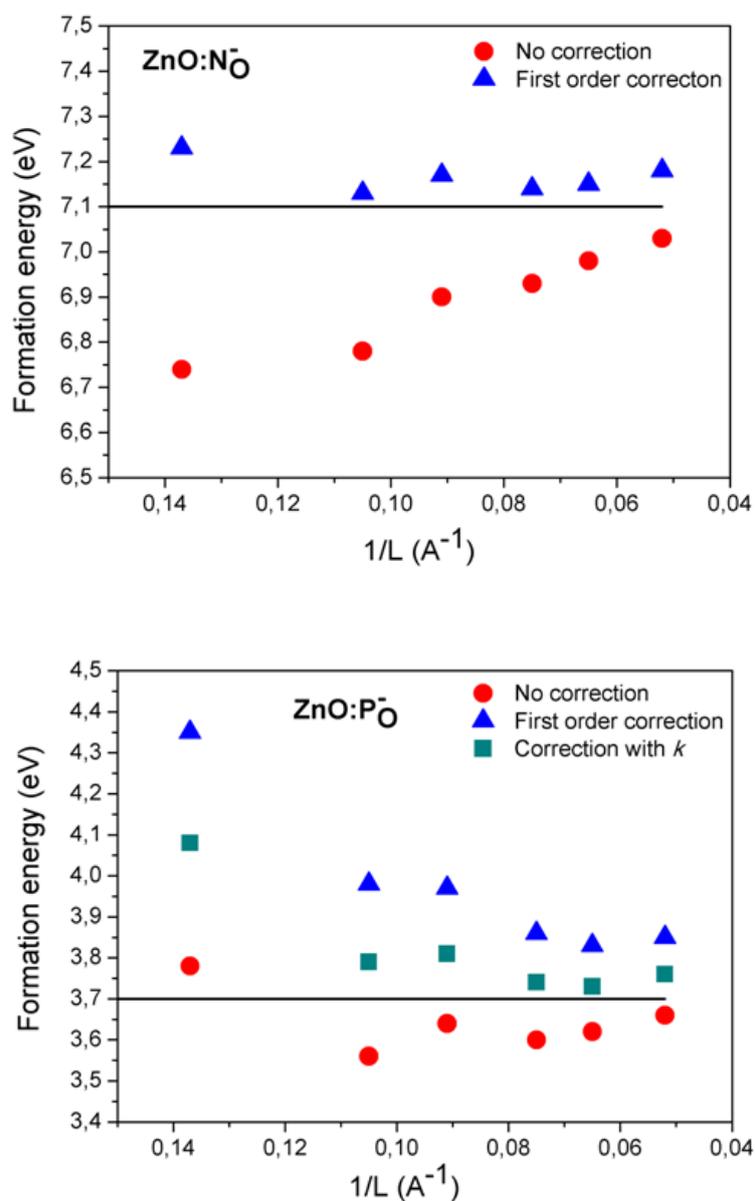
Первый член в уравнении 2 представляет собой кулоновское дефект-дефектное взаимодействие. Его можно тривиально вычислить с использованием CRYSTAL, поскольку он эквивалентен взаимодействию периодической системы, состоящей из атомов водорода в положениях дефектов, умноженных на q^2/ϵ_r . Полная энергия взаимодействия сообщается в стандартном выводе расчета CRYSTAL. Величина ϵ_r в уравнении 2 может быть получена из экспериментальных результатов или рассчитана непосредственно с использованием CRYSTAL [2, 13]. Второй член в уравнении 2 связан с взаимодействием между дефектами и фоновым зарядом кристаллической решетки. Аналитический расчет второго слагаемого в уравнении 2 не является прямым, поэтому его чаще получают численно. Однако во многих случаях данный терм достаточно мал и им можно пренебречь. Третий член масштабируется как $1/V^{-5/3}$ и из-за малости им почти всегда можно пренебречь. В нашей работе исследовано влияние включения только первого члена в вычисление энергии дефектов.

Дефекты N и P в ZnO. Рассчитана энергия образования дефектов и в зависимости от увеличения размеров суперячеек. Чтобы изолировать чисто электростатические эффекты, эти расчеты выполнялись без оптимизации геометрии. Результирующие энергии до и после применения поправок первого порядка (первый член в уравнении 2) показаны на рисунке 2а,б. Прямые линии на этом рисунке представляют собой рассчитанные энергии для суперячеек большого размера. Добавление членов первого порядка привело к лучшей сходимости энергии образования дефекта N_O^- , чем для дефекта P_O^- - поправка ведет к недооценке энергии образования для случая дефекта P_O^- . Примечательно, что энергии образования, рассчитанные для самой маленькой суперячейки из 32 атомов, как для первого, так и во второго случая очень плохо оцениваются даже после поправок первого порядка. Вероятней всего, это связано с тем, что заряд дефекта не полностью локализован внутри суперячейки. Кроме этого, размеры примесных атомов, внедряемых в кристалл, имеют большое влияние на локализацию заряда. Действительно, ковалентный радиус атома азота соизмерим с ковалентным радиусом замещаемого атома кислорода (у обоих $r=0.78$ Е) и для него наблюдается линейная сходимость энергии образования к значению в большой ячейке кристалла. В случае фосфора ($r=1.15$ Е) наблюдается сильная делокализация заряда, что ведет к недооценке дефект-дефектного взаимодействия. Исходя из нашего анализа по оценке энергии образования следует, что сходимость может быть значительно улучшена, если учитывать размеры примесных атомов при оценке дефект-дефектного взаимодействия как предмножитель $k=1-(r_{imp}/r_{host}-1)$, где r_{imp} и r_{host} - ковалентные радиусы атомов примесного атома и заменяемого атома решетки. Результаты коррекции энергии образования с учетом размера примеси атома фосфора показаны на рисунке 2.

Стоит отметить, что на энергию образования имеют влияние и другие дополнительные факторы, такие как эффекты упругости, которые также влияют на сходимость [14, 15]. Геометрическая релаксация вблизи дефектов может также приводить к изменениям в сходимости энергии дефектов относительно размера суперячеек.

В идеальном случае необходимо проанализировать скорость сходимости энергии образования дефектов в полностью релаксированной системе с увеличением размеров суперячеек. Однако в большинстве случаев такие тесты являются крайне дорогостоящими с точки зрения компьютерных ресурсов и времени вычислений, поэтому используются крайне редко. Анализ наших результатов показывает, что энергия образования дефектов N_O^- и P_O^- в ZnO может быть рассчитана с точностью 0.1 эВ для суперячейки с 72 атомами после включения коррекции смещения энергии и поправок первого порядка, заданных уравнением 2.

Закключение. В работе проведены *ab-initio* расчеты энергии образования акцепторных примесей атомов азота и фосфора в оксиде цинка. В результате показано, что необходима коррекция смещения энергии, позволяющая проводить сравнение между энергиями

Рисунок 2 – Энергии образования а) NO^- и б) PO^- в ZnO

заряженных и незаряженных систем. В маленьких суперячейках наблюдается делокализация электронного заряда, за счет чего возникают ошибки при оценке дефект-дефектного взаимодействия. Кроме того сильное влияние на распределение электронной плотности имеет размер атома примеси. По нашим оценкам, для улучшения показателей коррекции с расчетом в большой суперячейке, необходимо использовать предмножитель k (смотрите п.5.1). Вклад в сильную недооценку энергии образования в нашем случае может быть также за счет неучета взаимодействия между зарядом кристалла и дефекта (2 член в уравнении 2), поэтому необходимо дальнейшее исследование. В идеальном случае сходимость энергии образования заряженного дефекта должна анализироваться в полностью релаксированной системе с увеличением размера системы. Однако, как правило, достаточно выполнить один расчет энергии на ячейке с приблизительным размером $10 \times 10 \times 10$ ЕЗ и оценить энергетический член, обусловленный кулоновскими взаимодействиями между периодически повторяющимися заряженными дефектами, для получения энергии образования изолированного дефекта в пределах 0.1 эВ.

Список литературы

- 1 deWalle CG V, Neugebauer J. First-principles calculations for defects and impurities: Applications to III-nitrides // J. Appl. Phys.- 2004. -V.95. №8. -P.3851.
- 2 Bailey C L, Liborio L, Mallia G, Tomirc S, Harrison N. M. Defect physics of CuGaS₂ // Phys. Rev. B.- 2010.- V.81. №20. -P.205214.
- 3 Dovesi R, Saunders V R, Roetti R, Orlando R, Zicovich-Wilson C M, Pascale F, Civalieri B, Doll K, Harrison N M, Bush I J, D'Arco P, Llunell M. CRYSTAL14 User's Manual. -M.:University of Torino, Torino, 2014. - 154с.
- 4 Jaffe J E, Hess A C. Hartree-Fock study of phase changes in ZnO at high pressure// Phys. Rev. B.-1993.-V. 48. №11. -P.7903.
- 5 Bredow T, Lerch M, Anion Z. Distribution in Zr₂ON₂ // Anorg. Allg. Chem. - 2004. - V.630. №13. -P.2262.
- 6 Heyd, J., Peralta, J. E., Scuseria, G. E., Martin, R. L.. Energy band gaps and lattice parameters evaluated with the Heyd-Scuseria-Ernzerhof screened hybrid functional // J. Chem. Phys. -2005. - V.123. №17. -P.174101.
- 7 Mulliken R. S. Electronic Population Analysis on LCAO-MO Molecular Wave Functions. I // J. Chem. Phys. - 1955. - V.23. №10. - P.1833.
- 8 Perdew J.P., Burke K., Ernzerhof M. Generalized Gradient Approximation Made Simple //Phys. Rev. Lett.-1996. -V.77.№18. - P.3865 - 3868.
- 9 Usseinov A.B., Kotomin E.A., Zhukovskii Yu., Purans J., Akilbekov A. Hydrogen adsorption on the ZnO (1-100) surface: ab initio hybrid density functional linear combination of atomic orbitals calculations //Physica Scripta. - 2014. - V.89. - P. 045801-045809.
- 10 Gryaznov D. et.al. A Comparative Ab Initio Thermodynamic Study of Oxygen Vacancies in ZnO and SrTiO₃: Emphasis on Phonon Contribution // J. Phys. Chem. C. - 2013.- V.117. №27. -P.13776-13784.
- 11 Ewald P. Die Berechnung optischer und elektrostatischer Gitterpotentiale // Ann. Phys.- 1921.-V.369.№3.- P.253.
- 12 Makov G, Payne M C. Periodic boundary conditions in ab initio calculations // Phys. Rev. B.-1995. - V.51.№7. - P.4014.
- 13 Darrigan C, Rerat M, Mallia G, Dovesi R. Implementation of the finite field perturbation method in the CRYSTAL program for calculating the dielectric constant of periodic systems //J. Comp. Chem.- 2003.-V.24.№11.- P.1305.
- 14 Castleton C W M, Høglund A, Mirbt S. Density functional theory calculations of defect energies using supercells //Modelling Simul. Mater. Sci. Eng. - 2009. -V.17. №8. -P.084003.
- 15 Freysoldt C, Neugebauer J, de Walle C G V. Fully Ab Initio Finite-Size Corrections for Charged-Defect Supercell Calculations // Phys. Rev. Lett. -2009. -V.102. №1. -P.016402

Н.С. Ыбыраев¹, А.Б. Усеинов^{1,2}, А.Т. Ақылбеков¹, М.В. Здоровец², Н.Б. Оралбеков¹,
А.Б. Дуkenov¹

¹ Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті, Астана, Қазақстан

² ядролық физика Институтының Астаналық филиалы, Астана, Қазақстан

CRYSTAL бағдарламасын қолдана отырып ZnO-дағы зарядталған дефектілерді *ab-initio* есептеулер

Аннотация: жұмыста CRYSTAL14 бағдарламасын қолдана отырып, АОЛК жуықтауында цинк оксидіндегі зарядталған дефектілердің *ab-initio* есептеулері көрсетілген. Дефектілердің жоғары концентрациясы (дефектілердің жақын орналасуы) кезінде кристалл ұяшығында айтарлықтай заряд делокализациясы әсерінен түзілу энергиясының жете бағаланбауы байқалады. Ығысу коррекциясы мен дефект-дефектілік әсерлесуді енгізу кезінде түзілу энергиясының көрсеткіштері үлкен ұяшықпен салыстырғанда артады. Алайда, зерттеулер көрсеткендей, дефект-дефектілік әсерлесуде қоспалық атомдардың ковалентті өлшемін де ескеру қажет. Алынған нәтижелер алдыңғы басқа есептеу әдістері қолданылған теориялық жұмыстармен сәйкес келеді, дефектілердің энергетикалық сипаттамаларын сапалы түрде сипаттай алады.

Түйін сөздер: зарядталған дефектілер, *ab-initio* есептеулер, түзілу энергиясы, қоспалық атом, ығысу коррекциясы, дефект-дефектілік әсерлесу.

N.S. Ybyraev¹, A.B. Usseinov^{1,2}, A.T. Akilbekov¹, M.V. Zdorovets², N.B. Oralbekov¹, A.B. Dukenov¹

¹ L.N. Gumilyov Eurasian National University, Astana, Kazakhstan

² Astana Branch of the Institute of Nuclear Physics, Astana, Kazakhstan

Ab-initio calculation of charged defects in ZnO using the program CRYSTAL

Abstract: in the paper, *ab-initio* calculations were performed in the LCAO approximation using the CRYSTAL14 program for charged defects in zinc oxide. It is shown that at a high concentration of defects (close to the location of defects), an underestimation of the energy of formation is observed in connection with a significant delocalization of the charge in the crystal cell. The inclusion of bias correction and defect-defective interaction improves the readings in comparison with the formation energy in a large supercell. However, as studies have shown, it is also necessary to take into account the covalent dimensions of impurity atoms in the defect-defect interaction. The obtained results are in good agreement with the previous theoretical works, in which other calculation methods were used and are capable of qualitatively describing the energy characteristics of the defects.

Keywords: charged defects, *ab-initio* calculations, energy of formation, impurity atom, bias correction, defect-defective interaction.

References

- 1 deWalle CG V, Neugebauer J. First-principles calculations for defects and impurities: Applications to III-nitrides, *J. Appl. Phys.*, **95**(8), 3851 (2004).
- 2 Bailey C L, Liborio L, Mallia G, Tomirc S, Harrison N. M. Defect physics of CuGaS₂, *Phys. Rev. B.*, **81**(20), 205214 (2010).
- 3 Dovesi R, Saunders V R, Roetti R, Orlando R, Zicovich-Wilson C M, Pascale F, Civalleri B, Doll K, Harrison N M, Bush I J, D'Arco P, Llunell M. CRYSTAL14 User's Manual (University of Torino, Torino, 2017).
- 4 Jaffe J E, Hess A C. Hartree-Fock study of phase changes in ZnO at high pressure, *Phys. Rev. B.*, **48**(11), 7903(1993).
- 5 T. Bredow, M. Lerch, Z. Anion Distribution in Zr₂ON₂, *Anorg. Allg. Chem.*, **630**(13), 2262 (2004).
- 6 Heyd, J., Peralta, J. E., Scuseria, G. E., Martin, R. L. Energy band gaps and lattice parameters evaluated with the Heyd-Scuseria-Ernzerhof screened hybrid functional, *J. Chem. Phys.*, **123**(17), 174101 (2005).
- 7 Mulliken R. S. Electronic Population Analysis on LCAO-MO Molecular Wave Functions. I, *J. Chem. Phys.*, **23**(10), 1833 (1955).
- 8 Perdew J.P., Burke K., Ernzerhof M. Generalized Gradient Approximation Made Simple, *Phys. Rev. Lett.*, **77**(18), 3865 – 3868 (1996).
- 9 Usseinov A.B., Kotomin E.A., Zhukovskii Yu., Purans J., Akilbekov A. Hydrogen adsorption on the ZnO (1-100) surface: ab initio hybrid density functional linear combination of atomic orbitals calculations, *Physica Scripta.*, **89**, 045801-045809 (2014).
- 10 Gryaznov D. et.al. A Comparative Ab Initio Thermodynamic Study of Oxygen Vacancies in ZnO and SrTiO₃: Emphasis on Phonon Contribution, *J. Phys. Chem. C.*, **117**(27), 13776–13784 (2013).
- 11 Ewald P. Die Berechnung optischer und elektrostatischer Gitterpotentiale, *Ann. Phys.*, **369**(3), 253 (1921).
- 12 Makov G, Payne M C. Periodic boundary conditions in ab initio calculations, *Phys. Rev. B.*, **51**(7), 4014 (1995).
- 13 Darrigan C, Rerat M, Mallia G, Dovesi R. Implementation of the finite field perturbation method in the CRYSTAL program for calculating the dielectric constant of periodic systems, *J. Comp. Chem.*, **24**(11), 1305 (2003).
- 14 Castleton C W M, Hoglund A, Mirbt S. Density functional theory calculations of defect energies using supercells, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.*, **17**(8), 084003 (2009).
- 15 Freysoldt C, Neugebauer J, de Walle C G V. Fully Ab Initio Finite-Size Corrections for Charged-Defect Supercell Calculations, *Phys. Rev. Lett.*, **102**(1), 016402(2009).

Сведения об авторах:

Usseinov A.B. - доктор PhD, Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Мунайпасова 13, Астана, Казахстан.

Akylbekov A.T. - доктор физико-математических наук, профессор, Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан.

Zdorovets M.V. - кандидат физико-математических наук, Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Проспект Абылай хана., 2/1, «МНИК», Астана, Казахстан.

Bybraev H.C. - магистрант, Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Сатпаева 6/1, Астана, Казахстан.

Dukenov A.B. - магистрант, Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Байтурсынова 33/1, Астана, Казахстан.

Oralbekov N.B. - магистрант, Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Петрова 19, Астана, Казахстан.

Ybyrayev N.S. - Master of Science, L.N. Gumilyov Eurasian National University, Satpayev 6/1, Astana, Kazakhstan.

Usseinov A.B. - doctor PhD. L.N. Gumilyov Eurasian National University, Munaitpasova 13, Astana, Kazakhstan.

Akylbekov A.T. - Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor, L.N. Gumilyov Eurasian National University. Munaitpasova 13, Astana, Kazakhstan.

Zdorovets M.V. - Candidate of Physical and Mathematical Sciences, L.N. Gumilyov Eurasian National University. Prospect Abylai Khan., 2/1, "MNIK", Astana, Kazakhstan.

Dukenov A.B. - Master of Science, L.N. Gumilyov Eurasian National University, Baytursynov 33/1, Astana, Kazakhstan.

Oralbekov N.B. - Master of Science, L.N. Gumilyov Eurasian National University, Petrova 19, Astana, Kazakhstan.

Поступила в редакцию 25.05.2018