تطوير جهد نوع Tersoff لأجسام متعددة للسليكون

Development of a many-body Tersoff-type potential for silicon

Brian W. Dodson

قدم Tersoff جهد تجريبي للسليكون وجد انه غير مستقر لحسابات التراكيب العالمية حيث ان تركيب bcc يمتلك طاقة اقل من تركيب الماس بمقدار 1 eV/atom، مع هذا الجهد. دراسات محاكاة مفاضلة التلدين المعالجة الحرارية) لمعاملات الملائمة لقاعة بيانات ميكانيكا الكم للسليكون كشفت ان عيوب تركيبية خطيرة (بالنسبة لسلوك السليكون) لا يمكن تجنبها. لقد قمنا بإدخال تعديل لجهد Tersoff يعمل على المحافظة على دقة المعاجلة للسطح وخواص العيوب التي ظهرت مع هذا الجهد لكن انتجت ملائمة مناسبة للمادة الكتلية وخواص تراكيب السليكون ذات الكثافة العالية. يمكن استخدام الجهد الناتج لحسابات التركيب العالمية.

المقدمة Introduction

هناك اهتمام كبير في المحاكاة الذرية للخواص التركيبية لأشباه الموصلات رباعية السطوح. اكتسب هذا الاهتمام قوته من خلال العديد من عمليات اعادة تشكيل السطح التي لوحظت في السليكون ومن الحاجة لفهم التراكيب في حالة عدم الاتزان وتقنيات المعالجة التي لها تطبيقات في اجهزة اشباه الموصلات. بسبب التركيب رباعي الاسطح المفتوح للسليكون في حالته الكتلية، فان جهد pairwise بسيط لا يكفي. اضافة لذلك، لان الاهتمام يركز بصفة عامة على دراسة تراكيب كبيرة ليست دورية، فان حساب طاقات التركيب باستخدام ميكانيكا الكم ليس عمليا. لهذا ركزت الجهود حديثا على تطوير جهد ثلاثة اجسام تجريبي كلاسيكي. مثل هذا الجهد يمكنه ان يجعل تركيب الماس مستقرا بينما ساهمت في تسهيل المشاكل ذات الاهتمام.

اقدم جهد ثلاثة اجسام تجريبي لأشباه الموصلات بالطور الماسي هي جهد التكافؤ-القوة [1]. جوهر هذه الطريقة، والتي تم استخدامها مع نجاح كبير لدراسة الفونون وخواص التشوه المرن، هو توسعة طاقة الجهد بدلالة الازاحات الذرية حول بعض التراكيب المرجعية. في حالة السليكون، هذا التركيب المرجعي هو الطور الماسي. بعض الجهود تكون مضربة بطبيعتها ولا يمكن ان تستخدم بشكل مناسب لأنظمة بطوبولوجي غير مثالي، مثل التراكيب والاسطح ذات عيوب والانصهار.

للتعامل مع هذه التراكيب العامة بشكل مناسب، فإننا نحتاج إلى وجود جهود تغطي بشكل دقيق كل فراغ الترتيب المتوفر. تم دراسة هذا الاحتياج في العديد من الاشكال في اخر عامين. المحاولة الأولى كانت بواسطة Pearson, Takai, Halicioglu & Tiller (PTHT) [2]. لقد عاملو تفاعل pairwise من خلال حد Lennard-Jones وحد الثلاثة اجسام بواسطة جهد Axilrod-Teller لتفاعلات van der Waals للأجسام الثلاثة [3]. لا يوجد أي سبب فيزيائي لاختيار هذه الحدود لتمثيل سلوك السليكون، واستخدم الجهد ببساطة كدالة ملائمة. جهد الـ PTHT لا يتوقع بخواص مرونة معقولة للسليكون في حالته الكتلية او الضغط العالي لأشكاله المتعددة لكنه يلائم العناقيد الصغير بشكل جيد.

محاولة اخرى كان لها نجاح كبير اجريت بواسطة Stillnger وWeber (SW) [4]، اللذان صمما جهد تجريبي لثلاثة اجسام لنمذجة انصهار السليكون. لقد استخدموا جهد Lennard-Jones وشمل على حد في جهد الثلاثة اجسام والذي يميز التركيب الرباعي الاسطح المثالي. هذا يمتلك صفة مميزة لطريقة مجال القوة – التكافؤ، لكنه صيغ بحيث تكون امكانية الطوبولوجيات الغير مثالية غير مستبعدة، لكنه مثبط فقط بالجهد. بينت دراسات جهد sw انها تستنسخ خواص المرونة للسليكون في حالته الكتلية، لكنها لا تتعامل مع بعض

التراكيب السطحية، والاشكال الهندسية ذات عدد تناسق منخفض، او الاشكال المتعددة ذات الضغط العالي بشكل مناسب [5]. استخدم هذا الجهد لدراسة انصهار السليكون، [4]، والنحت عند الحد الفاصل (100) بين المذاب والبلورة [6]، واستقرار طبقات SiGe المترابطة بقوة على ارضيات Si(111) [7]. كل هذه الدراسات تقارن بشكل جيد مع التجارب العملية المقابلة و/أو مع نظرية التداخل المتصل، وادت الى موثوقية الاعتماد على جهد SW.

فئة محسنة من الجهود التجريبية للسليكون واشباه الموصلات ذات الرابطة التساهمية الاخرى تعتمد بشكل بسيط على افكار من كيمياء الكم والملاحظات المتعلقة بالسلوك الميكانيكي للمواد الصلبة [8, 9]. الفكرة الاساسية هنا قدمت في البداية بواسطة Abell [10]، هو ان الرابطة يمكن ان توصف بشكل مناسب بالتفاعلات المزدوجة (بحيث ان جهد نوع Morse هو تقريب مناسب)، ولكن شدة تفاعل المزدوج يتأثر بالبيئة المحيطة، على سبيل المثال، بتداخل حدود الاجسام العديد. هذه الصورة للرابطة التساهمية قد طورت واستخدمت بواسطة كلا من Biswas وHamann للسليكون [11]. لقد عبروا عن البيئة بجوار زوج الرابطة من خلال مفكوك لاجرانج متعدد الحدود الذي من ثم استخدم لتعديل الجهد المزدوج من النوع Morse المعمم. تم ملائمة جهد الاجسام المتعددة (لازال تجريبي) بنظرية دالة الكثافة (DFT) لقاعدة بيانات البنية التركيبية للسليكون [12]. عمل الجهد الناتج بشكل جيد على خواص المرونة للمادة الكتلية والاشكال المتعددة العالية الكثافة التي صنعت قاعدة البيانات. على أي حال، فشل الجهد بشكل كبير للعناقيد الصغيرة جدا، وبالإضافة لذلك فقد كان يستنزف الكثير من الوقت للحسابات على مقياس كبير. طبقا لذلك، فان هذا الجهد لم يتم فحصه بشكل موسع بالرغم من امكانياته الواعدة.

طريقة اخرى قريبة من طريقة Abell قد نفذت حديثا للسليكون بواسطة Tersoff [13]. سوف يتم اعتبار هذا الجهد بمزيد من التفصيل حيث انه الاساس للعمل في هذا البحث العلمي. نظام الطاقة هو المجموع على الجهد الغير متماثل Φ_{ij}

$$E = 0.5 \sum_{i,j} \Phi_{ij} \ . \qquad (1)$$

جهد الـ pairwise Φ_{ij} يمتلك شكل Morse

$$\Phi_{ij} = f_{ij}(Ae^{-\lambda_1 r_{ij}} - B_{ij}e^{-\lambda_2 r_{ij}}) , \qquad (2)$$

حيث

$$B_{ij} = B_0 \exp(-Z_{ij}/b) , \qquad (3)$$

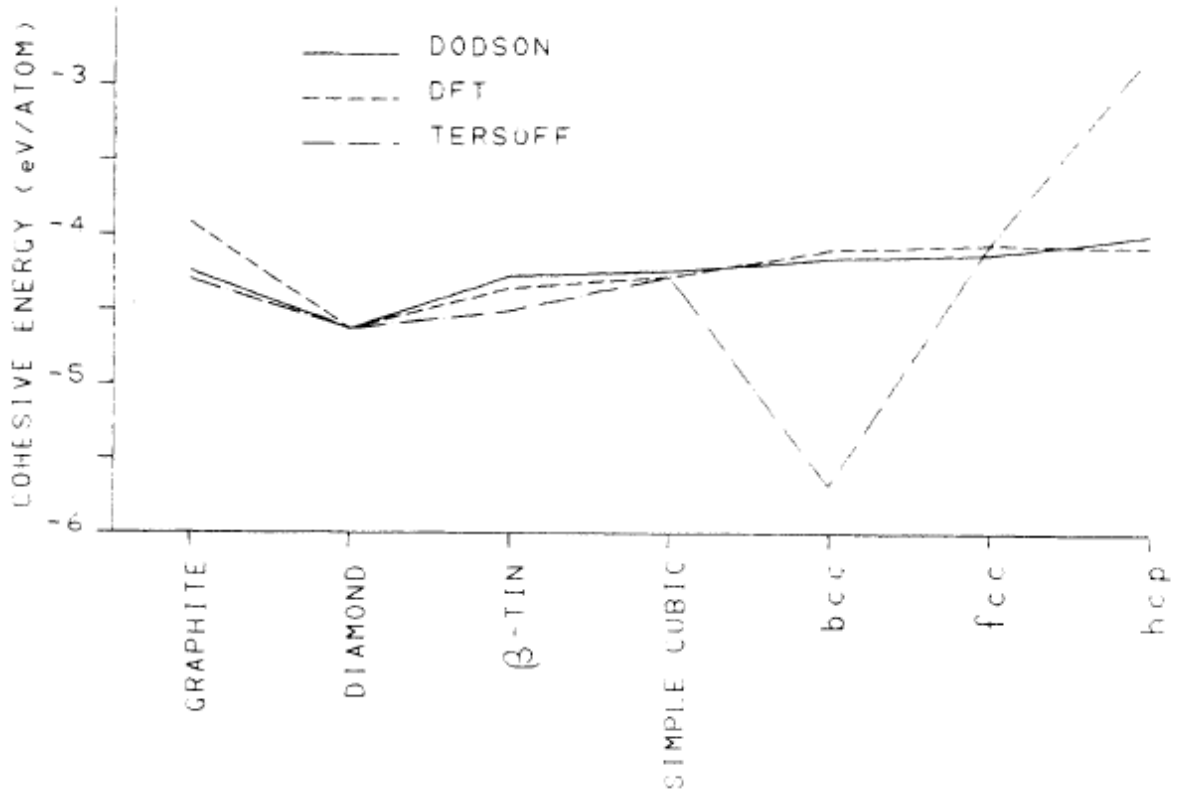
$$\lambda_1 = 2\lambda_2 ,$$

و

$$Z_{ij} = \sum_{k(k\neq i,j)} [f_{ik}/f_{ij}]^4 \exp[4\lambda_2(r_{ij} - r_{ik})] \times [c + \exp(-d\cos\Theta_{jik})]^{-1} , \qquad (4)$$

حيث f_{ij} هي حد القطع الاملس المتمركز حول 3.0Å. المعاملات الستة A,B0, λ2, b, c, d اختيرت بواسطة ملائمة ثابت الشبكة البلورية ومعامل ينج لطور الماس للسليكون وطاقات التماسك للماس، والمكعب البسيط، والسليكون ذو المكعب متمركز الوجه والسليكون الثنائي، بالاعتماد على القيم العملية وحسابات DFT بواسطة Yin وCohen [12].

يقوم جهد Tersoff بعمل جيد في وصف خواص المرونة للسليكون في الحالة الكتلية وعمل مقبول في تحديد طاقات التراكيب متعددة العيوب واعادة بناء السطح كذلك الاشكال الهندسية ذات عدد التناسق المنخفض [13]. لسوء الحظ، لقد قمنا بتحديد التركيب البلوري لادنى طاقة ولم تكن طور الماس. من بين التراكيب البلورية البسيطة، الادنى طاقة بمقدار اكبر من 1 eV/atom (انظر الشكل 1) يكون مرتبط مع الطور bcc.



الشكل 1. طاقات التماسك بوحدة eV/atom للعديد من تراكيب السليكون البسيطة المتولدة بواسطة نظرية دالة الكثافة (DFT) وجهد Tersoff، والبحث الحالي (Dodson).

هذا يعتبر قيد خطير لإمكانية تطبيق هذا الجهد. على سبيل المثال اذا حدث الانصهار ثم برد فان النموذج المعتمد على جهد Tersoff فانه لن يحدث التبلور في طور رباعي الاسطح. انه يمكن ان يستخدم في الشكل الاصلي لحساب بعض عيوب التراكيب، لكن بالتأكيد لا يمكن ان يستخدم في محاكاة النمو او حسابات الاستقرار العامة. انه دائما من الصعب تحديد اذا كان بالإمكان ان يطبق على مشكلة جديدة، لان الطور رباعي الاسطح غير مستقر. في هذا البحث العلمي سوف نقوم بوصف تقنية لإجراء مفاضلة عالمية لجهد Tersoff باستخدام محاكاة التلدين (المعالجة الحرارية) لمجموعة المعاملات. ومن بعد ذلك ستستخدم هذه التقنية لتوضيح ان جهد Tersoff مرضي في وصفه لطاقات تركيب السليكون. من ثم سوف نقدم تعديل لجهد Tersoff بحيث يكون مرضيا لحسابات التركيب العالمية مع الحفاظ على دقة المعالجة لأشكال السطح.

المفاضلة العالمية من خلال محاكاة التلدين Global optimization via simulated annealing

مشكلة المفاضلة العالمية للدوال متعددة المتغيرات هو انه لا توجد نظرية عامة او تقنية للحل [14]. الهدف من نظرية المفاضلة هو تقليل دالة الخطأ التي تصف الانحراف عن دالة التجربة والملائمة من الملائمة المثالية. دالة الخطأ هذه في الغالب تعرف باسم دالة التكلفة. هناك طريقتين ارشاديتين عامتين تستخدمان غالبا. هذه تتضمن تحسين تكراري للحلول تعتمد على فضاء عوامل البحث لإعادة الترتيبات التي تعمل على تقليل دالة التكلفة وتحدد الاستقرار الموضعي للملائمة المعطاة. هذه التقنيات في العادة تنحصر في القيمة الدنيا الموضعية، واستخدامها في تحديد القيمة الدنيا العالمية يكون تحذيريا في احسن حال. للتغلب جزئيا على هذه المعضلة، فانه يمكن ان تجرى عملية المفاضلة عدة مرات بدأ من معاملات ابتدائية مختلفة، ومن ثم قبول احسن اجابة. على أي حال هذه التقنية غير مفيدة في المشاكل التي تحتوي على عدة قيم دنيا موضعية.

تم تصميم فئة جديدة من التقنيات لمواجهة مشكلة المفاضلة العالمية بواسطة Kirkpatrick وGelatt وVecchi (KGV) [15]. هذه التقنيات الجديدة تعرف مجمعة باسم محاكاة التلدين، وتعتمد على التناظر بين ديناميكيات مؤشر ستوكس لفضاء طور الديناميكا الحرارية وديناميكيات طرق المفاضلة لفضاء المعاملات. بالأخص، اعادة تبلور السائل. عند درجات حرارة عالية يكون النظام في الحالة السائلة وتتحرك الجسيمات بحرية. اذا برد السائل ببطء يبدأ الترتيب تدريجيا بالظهور، في البداية كمادة صلبة متعددة التبلور مع عيوب وحدود حبيبية. مع استمرار عملية التلدين (التبريد البطيء)، تتحسن جودة البلورة حتى تتشكل بلورة مفردة. تكون البلورة في حالة ادنى طاقة للنظام، وهذا ناتج عن عملية التبريد البطيء. مع استمرار التبريد بسرعة تكون الحالة النهائية متعددة التبلور، لكنها ستعرض الرابطة التي تظهر في البلورة. بالتناظر مع محاكاة مفاضلة التلدين، فان دالة التكلفة تكون شريك لطاقة النظام. درجة حرارة النظام مرتبطة بالاهتزازات المسموحة لدالة التكلفة تحت اضطرابات مجموعة العوامل. تمثل حالة السائل الشرط الذي تكون عنده الاهتزازات لدالة التكلفة كبيرة بما فيه الكفاية بحيث ان المعاملات يمكن ان تتغير بحرية. عندما تنخفض درجة الحرارة فان مدى تغير المعاملات يقل والتصحيحات بين قيم المعاملات المختلفة يزداد. المناظر لحالة التبلور النهائية هي مجموعة المعاملات والتي تنتج في افضل ملائمة تعتمد على دالة الخطأ المختارة للمفاضلة. ميزة محاكاة التلدين هو ان النظام يمكن ان يبحث فوق فضاء ترتيب كامل لاختيار القيمة العالمية الادنى تماما مثل نظام ديناميكي حراري سوف ينتقل لكل المناطق الممكنة لفضاء الطور.

يمكن ان تتم محاكاة عملية التلدين باستخدام واحدة من التقنيات المتعددة لتحديد مسار النظام من خلال فراغ المعاملات كدالة في درجة الحرارة. هذه التقنيات تشتمل على ديناميكيات جزيئية، وطرق Monte Carlo وديناميكيات Langevin. بالرغم من ان هذه التقنيات تصف مسارات مختلفة خلال فضاء الطور، الا انها جميعا تعطي نفس المتوسطات الديناميكية الحرارية، وعليه يمكن استخدامها جميعا لنمذجة عملية التلدين. سوف نركز على طريقة Monte Carlo. في هذه الطريقة يتعرض النظام الذري إلى تغيرات عشوائية في ترتيبها. يقبل التغير اذا انخفضت طاقة النظام. اذا ازدادت الطاقة فان التغير يكون مقبولا باحتمالية exp(-ΔE/kBT)، هذا يكون توزيع احتمالية بولتزمان. يعرف هذا كخوارزمية Metropolis Monte Carlo [16]. النقطة الاساسية هنا هو ان النظام الديناميكي الحراري لا يمكن ان يصبح محصورا في ادنى طاقة موضعية عندما يتعرض لتبريد بطيئ، لان التغيرات في الترتيب التي تعمل على زيادة الطاقة تكون مقبولة في بعض الاحيان. وعليه فان النظام يميل لتسلق القيمة الدنيا الموضعية. تحدد درجة الحرارة الحجم المطلوب للحركة للاعلى هذه، والتي تصبح اقل اهمية مع انخفاض درجة الحرارة. لهذا عندما يكون التبريد بطيء جدا ينتج عنه مجموعة متحللة (degenerate) من القيم الدنيا العالمية.

لتطبيق طريقة التلدين لمسائل ديناميكية غير حرارية فانه يتطلب التالي (المناظر الديناميكي الحراري مدرج بين قوسين).

(i) مجموعة معاملات تصف النظام (مواقع الجسيم).
(ii) طريقة لتغير المعاملات عشوائيا (محاولة حركة الجسيم العشوائية).
(iii) دالة تكلفة قيمتها الدنيا هي هدف المفاضلة (نظام الطاقة).
(iv) معامل التلدين T (درجة الحرارة) ومخطط التلدين.

اننا مهتمون في مفاضلة الملائمة لدالة الجهد التجريبي للعديد من التراكيب في قاعدة بيانات ميكانيكا الكم، كما هو معطى بواسطة Yin وCohen [12]. عندما نبدأ بجهد Tersoff (المعادلات (1) – (4))، المعاملات الستة A, B_0, λ_2, b, c, d تشكل مجموعة المعاملات المناظرة لمواقع الجسيم. طريقة تغير مجموعة المعاملات عشوائيا طريقة مباشرة، مثل معامل التلدين. الصعوبة الرئيسية هو تطوير دالة تكلفة مناسبة. من الواضح انه يجب تطوير بعض المعايير لجودة الملائمة لقاعدة بيانات ميكانيكا الكم. انه من الواضح ان مثل هذه المعايير للملائمة سوف تكون اختيارية وشاملة للأفكار المتعلقة بكيف يجب ان يكون سلوك الجهد التجريبي. لقد اخترنا لهدف التبسيط دالة مربع الفرق المعممة كدالة طاقة لدالة التكلفة:

$$E = \sum_k \alpha_i [\beta_i(\text{fit}) - \beta_i]^2 \ , \qquad (5)$$

حيث ان المجموع على نقاط مختارة من قاعدة بيانات ميكانيكا الكم. β_i هي قيمة مفضلة لفحص التركيب i (من قاعدة البيانات)، وβ_i(fit) هي القيمة لفحص التركيب الناتج من مجموعة معاملات الجهد الحالية. (β يمكن ان تكون طاقة نظام، والمسافة بين الذرات ومعامل ينج والخ). الـ α_i هي مقياس اهمية الملائمة لفحص التركيب i. (هذا هو حيثما تدخل الاختيارية المناظرة للطاقة، لحسن الحظ فان النتائج حساسة جدا لتفاصيل مناظر الطاقة (لجهد Tersoff))

الهدف من طريقة محاكاة مفاضلة التلدين هو ايجاد مجموعة المعاملات لجهد Tersoff الذي يجد افضل ملائمة لبيانات DFT كما هو موصوف من خلال مناظر الطاقة. اهداف الملائمة هو طاقة التماسك ومعاملات الشبكة البلورية ومعامل ينج للسليكون الرباعي الاسطح وطاقة التماسك ومعامل الشبكة البلورية للسيليكون الثنائي والجرافيتي والمكعب البسيط وbcc وfcc وhcp للسليكون، او المجموعات الفرعية لما ذكر اعلاه. (لاحظ اننا قدمنا معلومات حول التركيب اكثر من المستخدمة بواسطة Tersoff. هذا لم يحسن كثيرا الحالة). اجريت الملائمة من خلال طرق Monte Carlo كما ذكر من قبل. على مدى واسع لقيم αi وجدنا ان التركيب الماسي لا يمكن ان يجعل القيمة الدنيا العالمية بين التراكيب البلورية بدون انتاج اخطاء غير مقبولة في الطاقات وثوابت الشبكة البلورية للاطوار المهمة. الاستنتاج هو ان جهد Tersoff كما هو معبر عنه في المعادلات (1) – (4) غير مناسبة لمعالجة طاقات التراكيب العالمية في السليكون او اشباه الموصلات الرباعية الاسطح.

A modified Tersoff-type potential for silicon جهد نوع Tersoff المعدل للسليكون

لقد نجحنا في تطوير شكل مطور للجهد المعتمد على جهد Tersoff. هذا الجهد المعدل يحافظ على دقة المعالجة للتراكيب السطحية ولكنه ينتج ايضا الحدود العالمية المناسبة كما ويتنبأ بخواص الاشكال المتعددة ذات الكثافة العالية. الصيغة هي كما هو موضح في المعادلات (1) – (4)، لكن مع التخلص من القيد $\lambda_1=2\lambda_2$ والمعادلة (3) تصبح

$$B_{ij} = B_0 \exp[-(z_{ij})^{\eta}/b] \ . \qquad (3')$$

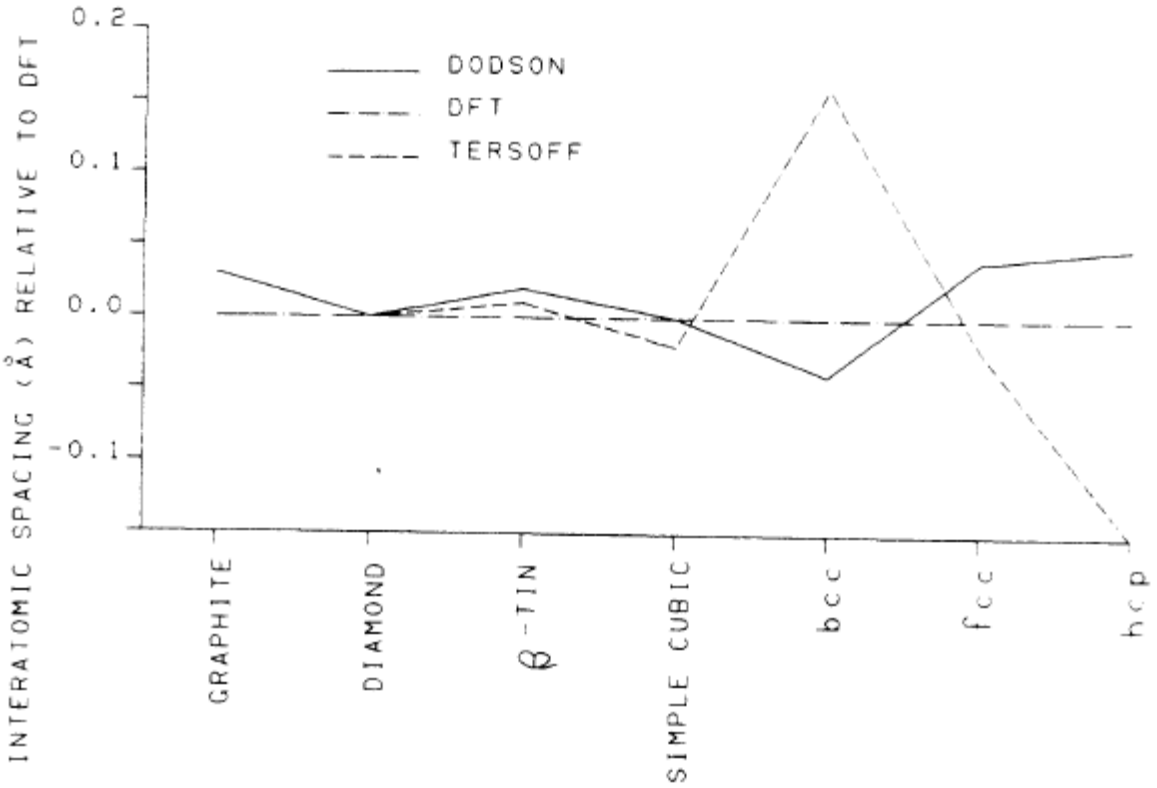
هذا التعديل يبدو انه يعطينا معاملين اضافيين ليتم ضبطهما ولكن سوف نجد ان التعديل الحر يعطي $\lambda_1=2\lambda_2$ أي ان الحرية المضافة لم تستخدم.

عند اجراء عملية محاكاة مفاضلة التلدين لمجموعة المعاملات للجهد المعدل الذي تم وصفه اعلاهـ باستخدام حسابات DFT كمجموعة بيانات لـ Yin وCohen [12] لثابت الشبكة البلورية وطاقة التماسك للأطوار الماس والمكعب البسيط وbcc وfcc وhcp ومعامل ينج للسليكون بطور الماس والفاصل الذري وطاقة الربط للسليكون الثنائي، وجدنا ان مجموعة المعاملات هي على النحو التالي: A=1614.6 وb=3.4785 وB_0=155.08 وc=0.8543 وλ_1=2.7793 وd=3.9588 وλ_2=1.3969 وη=0.6207. جدير بالملاحظة ان η في المعادلة (3a)، التي تساوي 1 في جهد Tersoff هو الان 0.6207. حجم التغير في η تشير إلى ان الجهد الجديد مختلف عن جهد Tersoff ويمثل تغير صغير.

يمكن مقارنة اداء الجهد الجديد مع جهد Tersoff من خلال فحص الشكلين 1 و2 حيث قمنا برسم طاقة التماسك وحجم الاتزان لمجموعة من الاشكال المتعددة ذات الكثافة العالية. من الشكل 1 يتضح ان طاقات Tersoff لـ bcc وhcp تكون على التوالي كبيرة جدا وصغيرة جدا والمسافات بين الذرية المقابلة (الموضحة في الشكل 2) هي ايضا في الخطأ. التحسين الكبير في الطاقات ومسافات الاتزان لهذه الاطوار الناتجة من استخدام الجهد الجديد ليست بسبب انها شملت في خطوة الملائمة للجهد الجديد لكن كما تم مناقشته سابقا فهو يعود إلى التغير في طبيعة الجهد. من بين التراكيب التي تم دراساتها في الشكلين 1 و2، التركيب الجرافيتي والتركيب β-tin لم تشمل في خطوة الملائمة. طاقة تركيب β-tin تنمذج بشكل افضل بالجهد الجديد والذي يعطي طاقة بمقدار 0.35 eV/atom فوق طور الماس، بالمقارنة مع 0.12 eV/atom لجهد Tersoff (القيمة النظرية هي 0.27 eV). ليس أي من الجهد يعمل بشكل جيد للطور الجرافيتي وطاقات التماسك المتوقعة في المدى من 4.30 eV/atom – 4.24-، بالمقارنة مع القيمة النظرية 3.92 eV- [17]. يعود هذا الفرق إلى رابطة π للتركيب الجرافيتي المستوي، والذي يمثل مهمة صعبة للجهود التجريبية الغير مصممة للتعامل مع روابط π.

معالجة هندسيات السطح بالجهد الجديد مشابهة لما يوفره جهد Tersoff. من خلال مثاليين وجدنا ان سطح السليكون (111) يسترخي للداخل بمقدار 30% من المسافة الفاصلة للطبقة الاولى، وهذا يقلل طاقة النظام

بمقدار 0.12 eV لكل ذرة سطحية، بالمقارنة مع نتائج DFT (37 – 29)% و0.17 eV – 0.15 لكل ذرة سطحية [18].



الشكل 2. المسافات بين الذرات بوحدة Å تولدت بواسطة الجهود التجريبية لـ Tersoff وDodson بالنسبة لتلك التي توقعتها نظرية دالة الكثافة (DFT).

كذلك اعادة بناء السليكون (111) 2×1 ينتج تقليل في الطاقة بمقدار 0.12 eV لكل ذرة سطحية، بالمقارنة مع 0.35 eV لكل ذرة سطحية كما هو متوقع بواسطة DFT. [19]. مرة اخرى، لوحظ تأثير رابطة π حيث ان اعادة البناء هذه تعتمد على مثل هذه الروابط بشكل اساسي. معظم نماذج الجهد التجريبي لا تتوقع اعادة البناء هذا [13]. هذه النتائج لترتيب السطح هي في الاساس غير مميزة عن جهد Tersoff. لهذا فان الجهد الجديد يبدو انه يحافظ على المزايا الجيدة العديدة لجهد Tersoff مع تجنب العقبات.

ملاحظة: طور Tersoff الان نسخة معدلة للجهد الاصلي والذي هو الان في مرحلة التقييم بواسطة مجموعات بحثية عديدة [20].

تمت الترجمة في المركز العلمي للترجمة

23-7-2012

www.trgma.com