



محاكاة الديناميكا الجزيئية لعناقيد السليكون

Molecular-dynamics simulation of silicon clusters

Estela Blaisten-Barojas & D. Levesque

اجريت محاكاة الديناميكا الجزيئية لعناقيد السليكون بـ 10 إلى 32 ذرة باستخدام جهد Weber و Stillinger [Phys. Rev. B 31. 5262 (1985)] تشتمل على مشاركات جسمين وثلاثة اجسام. تم فحص كلا من العناقيد المتعادلة والمشحونة بشحنة موجبة لتحديد هيئة ترتيب ادنى طاقة. تم الحصول على تسلسل نمو العناقيد مع هيئة ترتيبها المقابلة الناتجة عن احماد كل ترتيب عنقودي بعدد N ذرة متزنة عند درجة حرارة محدودة إلى درجة حرارة منخفضة. اجريت تجارب التبريد والتسخين حتى درجة حرارة 1500 K وبينت ان تحول طور السائل – الصلب تشوشت في هذه العناقيد الصغيرة المعزولة. تحليل دالة الترابط الزوجية $g(r)$ وتوزيع الكثافة لزوايا بين الروابط توفر طريقة مناسبة لملاحظة الترتيب الموضعي في هذه الانظمة الصغيرة.



المقدمة Introduction

تم مناقشة خصائص البنية التركيبية للمواد الصلبة الغير بلورية التساهمية من وجهات نظر مختلفة. لقد عرف ان مثل هذه الانظمة تمتلك ترتيب قصير المدى بدون تماثل عناصر تام. دراسة الانظمة الغير مرتبة ادى على سبيل المثال لنظريات مثل الهندسة الاحصائية [1] حيث ان وصفه الخصائص الطوبولوجية تسمح ببناء شبكة غير نهائية بتوزيعات احصائية لخواص قياسية [2]. طريقة اقل انتشارا او اكتشافا هي البحث عن فئة دوال الجهد [3, 4] لنمذجة المواد التساهمية وتوقع تفاصيل عملية التكتل التي تؤدي لعيوب موضعية مرتبطة مع تراكيب امورفس [1, 5]. هذه الطريقة الاخيرة يمكن ان تكون ذات اهمية في وصف نمو الاشكال المستقرة المفردة للعناقيد التساهمية المكثفة من البخار عند درجات حرارة منخفضة.

تجارب مطياف الكتلة الحديثة على عناقيد Si^+ (المرجعين 6 و 7) و Ge^+ (المرجع 7) و Sn^+ (المرجع 7) تظهر توجه ناحية سلاسل متداخلة لمعظم احجام العناقيد البارزة بالأخص في حالة ال- $(Si)_n^+$. عرف كلا من Martin و Shaber [7] اهمية بعض انواع ارتباطات الطوبولوجي للروابط في التكتل باقتراح امكانية حلقات السليكون بخمسة ذرات هي حجر البناء لأنواع امورفس محددة لنمو العنقود. هذه الامكانية قد ذكرت [5] في تجارب محاكاة الكمبيوتر لاطوار السليكون المكثف عند دراسة التركيب الموضعي للعيوب المتكثلة في الوسط المتبلور عند التلدين (المعالجة الحرارية annealing).

للسليكون والمواد التساهمية، فان الجهد المزدوج لا يكون كافيا بمفرده لوصف اتزان الشبكة البلورية. عدة جهود تشتمل حدود الجسمين والثلاثة اجسام استخدمت في البحوث العلمية [4] لحساب طاقات التركيب للبلورات التساهمية. بالأخص جهد Weber و Stillinger [5] (SW) له تسعة معاملات تم ضبطها لتلائم خواص السليكون بطور المكثف مثل شدة الرابطة وطاقة التماسك ودرجة حرارة الانصهار لتحقيق معيار انصهار Lindemann للمواد الصلبة لإعادة انتاج خواص التقلص (الانكماش) عند انصهار السليكون. الهدف من هذه المشاركة هو الكشف عن طريقة بحيث ان نموذج الجهد الكلاسيكي SW كافي لوصف المراحل الابتدائية لنمو عناقيد السليكون المتعادلة والمشحونة.

ترتيب هذا البحث العلمي هو على النحو التالي. في الجزء 2 عرض سريع لجهد التفاعل الغير جمعي SW مع وصف التعديلات على هذا التفاعل الناتج من ذرة تصبح موجبة الشحنة في كل عنقود. مع تفاصيل محاكاة الديناميكية الجزيئية لوصف سلسلة من تجارب التلدين بالكمبيوتر لعناقيد من 8 إلى 17 و 32 ذرة. نركز في



الجزء 3 على نتيجة تتابع النمو التي حصلنا عليها لكل من العناقيد المتعادلة والمشحونة. تم مناقشة خواص البنية التركيبية في الجزء 4 والاستنتاج في الجزء 5.

2. النموذج والطريقة Model and methods

التفاعل بين N من الذرات المتماثلة مع تناسقات (r_1, r_2, \dots, r_N) يمكن ان تتوسع في مشاركة n من الاجسام على النحو التالي:

$$\begin{aligned} V(r_1, r_2, \dots, r_N) = & \sum_{i=1}^N v_1(r_i) + \sum_{\substack{i < j \\ i, j = 1}}^N v_2(r_i, r_j) \\ & + \sum_{\substack{i < j < k \\ i, j, k = 1}}^N v_3(r_i, r_j, r_k) + \dots \\ & + \sum_{\substack{i_1, i_2, \dots, i_n = 1 \\ i_1 < i_2 < \dots < i_n}}^N v_n(r_{i_1}, r_{i_2}, \dots, r_{i_n}) \\ & + \dots \end{aligned} \quad (1)$$

انه في العادة نعتقد ان هذه السلسلة تقتارب بسرعة واول ثلاثة حدود تعطي تقريب معقول لجهد التفاعل. بدون مجالات خارجية، فان جهد SW يحتوي فقط على حدود زوجية وثلاثية من الشكل [5]:

$$v_2(r) = \begin{cases} A(Br^{-p} - r^{-q})\exp[(r-a)^{-1}], & r < a \\ 0, & r \geq a \end{cases} \quad (2)$$

و

$$\begin{aligned} v_3(r_{ij}, r_{ik}, r_{jk}) = & h(r_{ij}, r_{ik}, \theta_{jik}) \\ & + h(r_{ji}, r_{jk}, \theta_{ijk}) + h(r_{ki}, r_{kj}, \theta_{ikj}), \end{aligned} \quad (3)$$



حيث θ_{jik} هي الزاوية التي تقع بين j و k عند رأس i (قمة) لأي ذرات ثلاثية والدالة h تعطى بالعلاقة التالية:

$$h(r_{ij}, r_{ik}, \theta_{jik}) = \lambda \exp[\gamma(r_{ij} - a)^{-1} + \gamma(r_{ik} - a)^{-1}] \times (\cos\theta_{jik} + \frac{1}{3})^2 . \quad (4)$$

تتعدم هذه الدالة ما لم كلا من $r_{ij} < a$ و $r_{ik} < a$. لهذا يمتلك مدى التفاعل بين الذرات نسبة قطع محدودة عند $r=a$. الاختيار لتسعة معاملات في هذا البحث هو نفسه المستخدم في المرجع (5)، بمعنى ان $A=7.049556227$ و $B=0.602245584$ و $p=4$ و $q=0$ و $a=1.8$ و $\lambda=21.0$ و $\alpha=1.2$. كل القيم معطاة بوحدات مختزلة من $\sigma=2.0951 \text{ \AA}$ و $\epsilon=2.167 \text{ eV/atom}$ زوج من الطاقات.

اعتبر بعد ذلك ان ذرة من ذرات العنقود، لنقل الذرة رقم 1 مؤينة. المجال الكهربائي الناتج من الشحنة الموجبة q لهذه الذرة تحتوي على عزم ثنائي قطب μ_j على الذرات $N-1$ من العنقود. اذا كانت القطبية α للذرات تعتبر موحدة الخواص أي isotropic، فان الطاقة U^{ind} المضافة بواسطة الشحنة إلى طاقة العنقود V هي

$$U^{\text{ind}} = -q \sum_{i=2}^N \mu_i \cdot \frac{\mathbf{r}_{i1}}{r_{i1}} + \sum_{\substack{i,j=1 \\ i>j}}^N \mu_i \cdot \vec{T} \cdot \mu_j + \sum_{i=1}^N \frac{\mu_i^2}{2\alpha} , \quad (5)$$

حيث \vec{T} هي تنسور ثنائي القطب $\nabla\nabla(1/r)$.

في البحث الحالي تكون مشاركة ثنائي القطب المستحث μ_j للمجال الكهربائي على ذرات العناقيد مهمة. فقط الحدود الخطية في α التي بقيت تؤدي إلى $\mu_j = -q\alpha r_{j1}/r_{j1}^3$ ومثل هذا

$$U^{\text{ind}} \equiv \sum_{j=2}^N V_1(r_j) \equiv -\frac{1}{2} \sum_{j=2}^N q^2 \frac{\alpha}{r_{1j}^4} . \quad (6)$$

حدود الرتب العالية في α التي قد تكون متضمنة في U^{ind} ، لكن لان المعادلة (6) يجب ان تضاف إلى جهد النموذج SW الذي يحتوي على كلا من مشاركات الزوج الجمعي والغير جمعي، والحدود الإضافية في U^{ind} من الممكن ان تنتج في خيارات مختلفة للمعاملات التسعة. المعادلة (6) هي زيادة لدالة جهد النموذج مع حدود الجسم المفرد $v_1(r_j)$ والذي يعيد تقريبا انتاج التفاعل بين الذرة المتأينة مع كل الذرات الاخرى في



العنقود. حالة العناقيد المتأينة هذه يجب ان تكون قريبة لتجارب مطياف الكتلة. ولهذا للعناقيد المشحونة، فان طاقة الجهد الكلية V تعطى بالحدود الثلاثة الأولى للمعادلة (1). الحد الأول يقابل المعادلة (6) ومركبات الحد الثاني والثالث يقابل المعادلة (2) – (4). اجريت محاكاة الديناميكية الجزيئية مع طاقة الجهد هذه، حيث q تساوي صفر للعناقيد المتعادلة و $-q$ تساوي شحنة الكترونية واحدة للعناقيد المتأينة.

استخدمت الديناميكيات الجزيئية عند طاقة ثابتة، واختيرت وحدات الطول والطاقة لتكون σ و ϵ . الكميات المختزلة اختيرت للمسافة، ودرجة الحرارة والطاقة والزمن: $r^*=r/\sigma$ و $T^*=kT/\epsilon$ و $V^*=V/\epsilon$ و $t^*=t/\tau$ ، حيث $\tau=(m\sigma^2/\epsilon)^{1/2}=7.66\times 10^{-14}$ s و m هي كتلة ذرة السليكون. اختيرت الكثافة المرجعية $\rho^*=0.46\sigma^{-3}$ تساوي قيمة المادة الكتلية. تم حل معادلات الحركة باستخدام خوارزمية Verlet [8] مع خطوة زمنية بمقدار $\Delta t^*=0.01$ والتي تؤدي إلى الحفاظ على الطاقة بصورة جيدة.

يعرف العنقود على انه تكتل عدد N من الذرات متماسكة مع بعضها البعض بطاقة التفاعل التي وصفت في الفقرة السابقة. لان مدى التفاعل بين الذرات يمتلك نصف قطر محدود a ، فان هيئة ترتيب الذرات بقيت كعنقود اذا الذرات على سطح العنقود عند مسافات من اقرب جوار لها اقل من a . عندما تكون طاقة الحركة للذرة كبيرة بما فيه الكفاية لدفعها خارج القطع، فان المحاكاة تتوقف لان العنقود يتبخر. هذا الشرط الاخير يقيد دراسة العناقيد عند درجة حرارة منخفضة.

تجارب تالدين واخماد مختلفة بالطريقة التالية. في البداية اختيرت هيئة ترتيب واتزن العنقود عند اعلى درجة حرارة ممكنة وهذا متفق مع تعريفها. ثانيا، تم تبريد العناقيد بمعدل $\Delta T^*/\Delta t^*\sim 5\times 10^{-3}$ حتى درجة حرارة صفر. ثالثا، ادخلت العناقيد في حلقة من التسخين تبعها تبريد عند $T^*=0$ للتأكد من ان النظام ليس محصورا في مستوى metastable (مستوى بفترة بقاء طويلة نسبيا) عند درجة حرارة صفر. بشكل قياسي كان التشغيل عند كل درجة حرارة يستمر لـ 20τ ، ليسمح بـ 5τ للتوازن يتبعها زمن متوسط بمقدار 15τ .

3. طاقة الربط وتسلسل نمو العنقود Binding energy and sequence of cluster growth

يبين الشكلين 1(a) و 1(b) نتائج الديناميكا الجزيئية لطاقة الجهد المتوسط لكل جسيم $\langle V^* \rangle/N$ كدالة في درجة الحرارة المختزلة T^* . يقابل الشكل 1(a) العنقود المتعادل في المعادلة (6)، بينما الشكل 1(b) يعطي



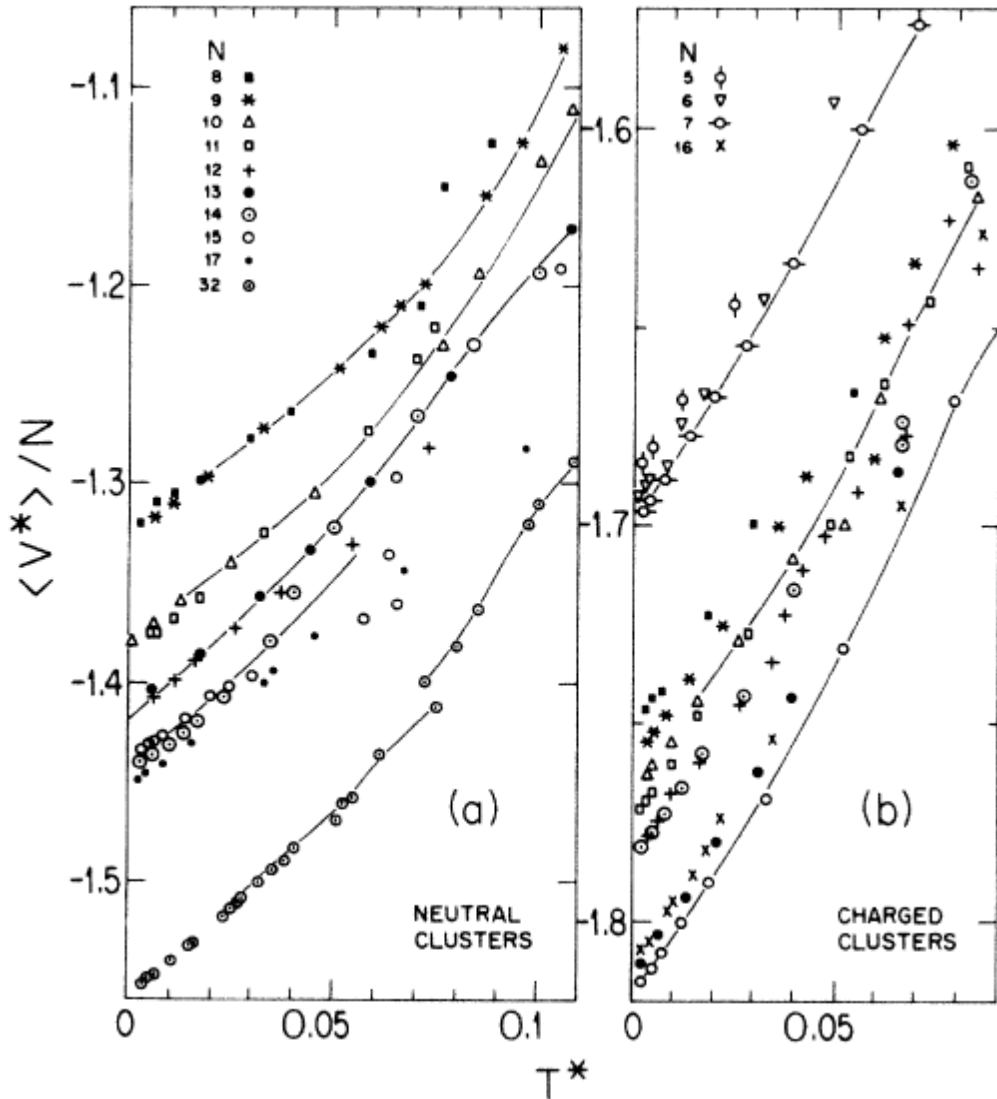
النتائج التي تم الحصول عليها للعناقيد المشحونة بـ $q=1$ و $\alpha=7.2 \text{ \AA}^3$ [9]. سلوك متوسط طاقة الجهد الموضحة في الشكل لا تظهر أي تغير يذكر لتغير طور الرتبة الاولى للسليكون في حالته الكتلية عند $T^*=0.08$ [5]. هذا مؤشر لان عدد $N=32$ هو عدد غير كافي من الذرات في حالة جهد نموذج SW ليعطي تحول طور حاد. على أي حال يجب ان نذكر ان الفئات الاخرى لدوال الجهد [10, 11] تبين تحول طور مشوش لعناقيد صغيرة مثل $N=13$. بالرغم من ان الشكل 1 لا يوضح أي تحول، الا ان تشتت النقاط لـ $T^*\sim 0.06$ كان اكبر من ما هو عند المناطق القريبة من درجة الحرارة المنخفضة والعالية. تم تسخين عنقود متعادل بـ 15 ذرة مع تغير طفيف لمعدل التسخين بالقرب من $T^*=0.07$ ، المسارين الذين تم الحصول عليهما موضحين في الشكل 2(a). من بين تجارب التبريد الاخرى على عناقيد موجبة الشحنة بـ 14 ذرة، في الشكل 2(b) يوضح عدم استمرارية لـ $\langle V^* \rangle / N$ بالقرب من $T^*\sim 0.07$. لان احجام العناقيد الاخرى لم يكن من الممكن الحصول على مسار واضح، انها مخاطرة ان نقدم استنتاج نهائي على وجود تغير طور مشوش بجوار $T^*\sim 0.07$ على اساس اعتماد طاقة الجهد على درجة الحرارة.

حد درجة الحرارة في الشكل 1 يبدو مناسب لأنه يتوافق بشكل جيد مع نتائج التوزيع المتوازن المتوقع للأنماط التوافقية المعادية، بمعنى ان السعة الحرارية المختزلة عند حجم ثابت

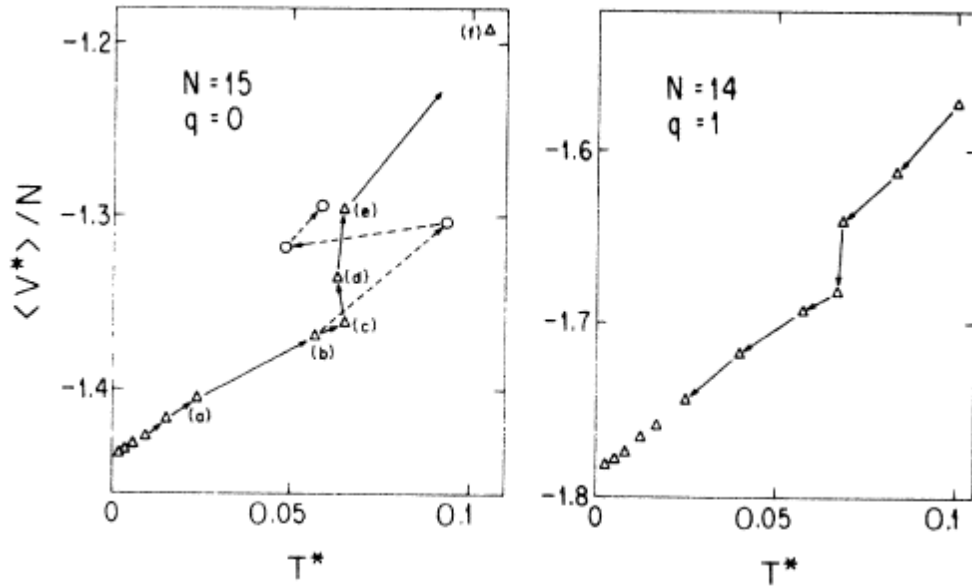
$$C_v^* = \frac{C_v}{Nk\varepsilon} = \frac{3N-6}{2N}, \quad (7)$$

يعيد بالضبط انتاج الميل للمنحنيات في الشكل 1. من المعروف ان الميل في المواد الماكروسكوبية (الجاهرية) يزداد إلى 2 كنتيجة للتفاعلات الغير توافقية. تبدو الزيادة في هذه العناقيد اكبر بعض الشيء 2.5~ وهذا من المحتمل بسبب السعات الكبيرة للاهتزازات الغير توافقية للذرات السطحية.

حد $T^* \rightarrow 0$ لـ $\langle V^* \rangle / N$ ، تعرف طاقة الربط لكل جسيم مرتبط مع هيئة الترتيب الهندسية المحددة للذرات. رسمت قيم هذه الطاقات في الشكل 3 مقابل N لكل من العناقيد المتعادلة والمشحونة. وصلت هذه الطاقات بالطريقة المذكورة في نهاية الجزء 2 أي بعملية الاخاماد حيث ان كل حالة متوسطة يكون مستوى متزن للعنقود.

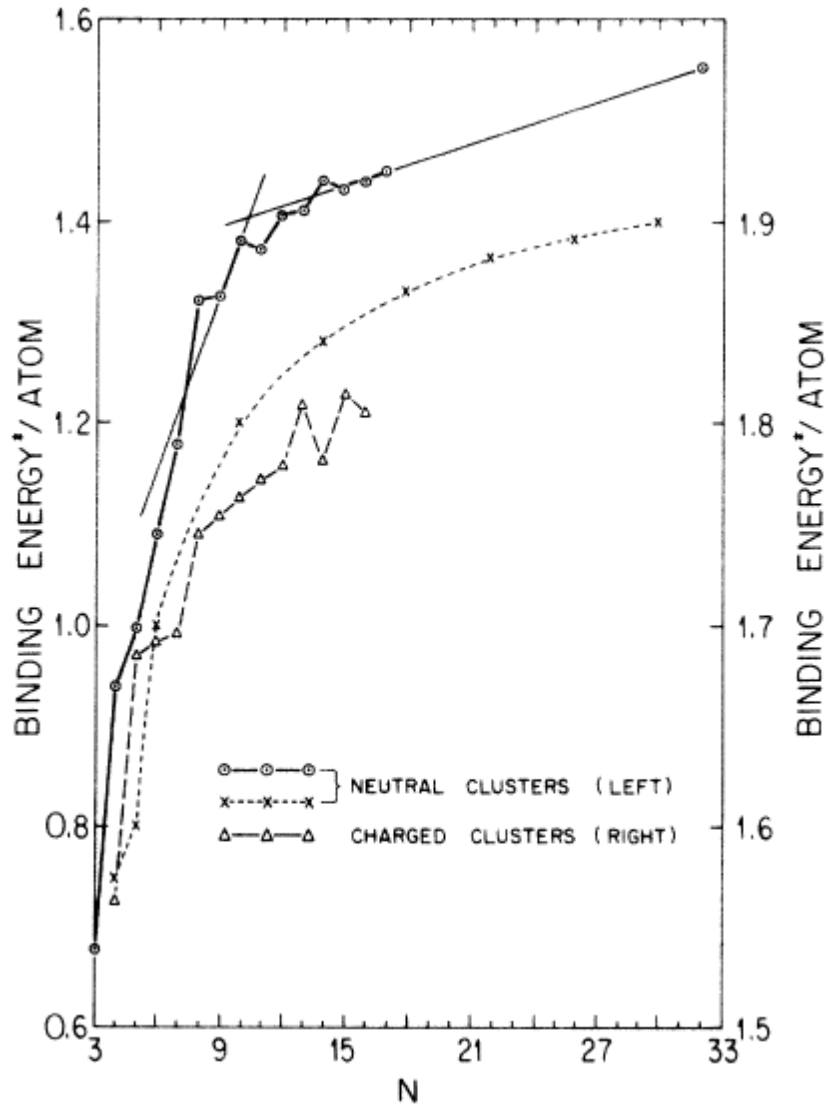


الشكل 1. متوسط طاقة الجهد المختزلة لكل ذرة كدالة في درجة الحرارة المختزلة. مخطط تشغيل الديناميكيات الجزيئية لـ (a) للعناقيد المتعادلة المتكونة من 8 إلى 17 ذرة و32 ذرة، (b) للعناقيد موجبة الشحنة المتكونة من 5 إلى 16 ذرة. طاقة الجهد بوحدة ϵ . الخطوط موجودة للإرشاد فقط



الشكل 2. متوسط طاقة الجهد المختزلة لكل ذرة كدالة في درجة الحرارة المختزلة. (a) تسخين عنقود من 15 ذرة يتبع مسارين: (i) من (a) عبر (f) و(ii) من (a) إلى (b) متبوعا بالخط المقطع. (b) مسار التبريد متبوعا بعنقود من 14 ذرة. طاقة الجهد بوحدة ϵ .

الطريقة مختلفة عن الطريقة المتبعة للباحثين آخرين حيث ان هناك هيئات ترتيب شبه مستقرة محددة تعرف بالامورفس تم التوصل له بالمحاكاة ل بالتبريد السريع. في الحقيقة الكثير من الترتيبات الشبه مستقرة للطاقة العالية يمكن الوصول لها من خلال تغير معدل التبريد عند تشكل العناقيد. يوضح الشكل 3 (الخط المنقط) تسلسل النمو المقابل لسلسلة التراكيب المتماثلة المبنية بوساطة وحدات رباعية الاسطح من اربعة ذرات مرتبطة.



الشكل 3. طاقة الربط المختزلة لكل ذرة مقابل عدد الذرات في العنقود. الخطوط الكاملة والمقطعة ترسم ديناميكية تسلسل معظم الترتيبات المستقرة للعناقيد المتعادلة والمشحونة بشحنة موجبة. الخط المنقط يعطي النمو الذي تم الحصول عليه بجمع وحدات رباعية الاسطم من اربع ذرات مرتبطة. تم رسم الخطوط الكاملة والمنقطة بالنسبة للمقياس الايسر والخط المقطع بالنسبة للمقياس الايمن.



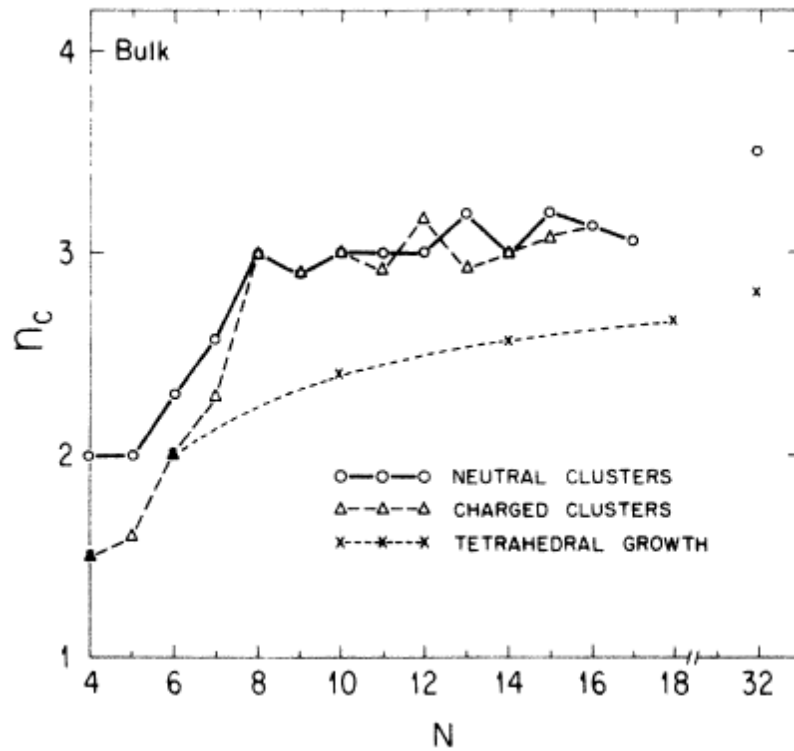
يجب ان ينتهي هذا التسلسل ببلورة ماسية مفتوحة [7]. انه مثبت ان باستخدام نموذج جهد SW يكون نمو السطح الرباعي مقابل ترتيبات العنقود شبه المستقر للطاقة الربط الدنيا، لهذا فان اقل استقرارا من تسلسل الترتيبات التي تم الحصول عليها بالتبريد المذكور مسبقا.

من المغربي ان نربط القمم لطاقة الارتباط العالية في الشكل 3 مع اكثر العناقيد وفرة والتي لوحظت عمليا في مطياف الكتلة. على أي حال، كما هو موضح اعلاه فانه من الممكن رسم التسلسلات الاخرى من النمو المقابل للتراكيب الشبه مستقرة. انه ليس من الواضح اذا الشروط العملية سوف تفضل بعض منها على الأخرى [12]. في الحالة الناتجة من المحاكاة، فانه يتضح من $T^*=0$ قيم $\langle V^* \rangle / N$ في الشكل (a) 1، كذلك من القمم الصغيرة لطاقة الربط في الشكل 3، ان العناقيد المتعادلة المحتوية على اقل من 8 ذرات هي في المدى المستقر تزيد طاقة الربط، بينما ازواج الذرات بـ (8, 9) و (10, 11) و (12, 13) و (15, 16) و (17) تمتلك تقريبا طاقة ربط متساوية لكل جسيم. هناك تعزيز طفيف لطاقة ربط العناقيد بـ 10 و 14 ذرة. للعناقيد ذات الشحنة الموجبة (الشكل 1(b) والخط المقطع على المقياس الايمن في الشكل 3) تكون طاقة الربط نفسها تقريبا لعناقيد من (5, 6, 7) و (8, 9, 10, 11, 12, 14) و (13, 15, 16) ذرة مع تعزيز طفيف عند $N = 13$ و 15.

في المواد المكسدة فانه من السهل ان نربط العدد السحري magic number (عناقيد اكثر وفرة) للقشرة الذرية المغلقة حول الذرة المركزية. هذه ميزة للمواد بعدد تناسق كبير (متوسط عدد الروابط التي يكون فيها كل ذرة قادرة على التشكل). على أي حال، عندما يكون عدد التناسق منخفض، كما في المواد المرتبطة رباعية الاسطح، مبدأ القشرة الذرية هذا هنا مفقود. علاوة على ذلك في حالة التكتلات المعزولة فان كل الذرات تميل لان تكون على سطح العنقود ولهذا فان عدد التناسق هو 3 تقريبا. هذا موضح في الشكل 4، حيث الروابط تعرف على انها مسافة اقرب جوار $1.4 \leq$. العناقيد باقل من 8 ذرات (المتعادلة والمشحونة) تمتلك متوسط عدد تناسق اقل من 3. مع زيادة حجم العنقود فان عدد التناسق يؤول ببطء إلى 4. لاحظ ان نمو السطح الرباعي يعني عدد تناسق منخفض مع سلوك تقارب (asymptotic) ضعيف (الخط المنقط).

على الجانب الاخر فان تسلسل النمو لاقصى طاقة ربط تعطي ميزة واضحة. اذا تم تحليل ميل طاقة الربط لكل ذرة في الشكل 3، فانه من المؤكد ان التغيير الحاد في الية التكتل تبدأ عند $N \sim 11$ للعناقيد المتعادلة. هذه الحقيقة من الممكن ان ترتبط مع مشاهدة Martin و Shaber [7] للتحويل المحدد جيدا من عناقيد غنية بالسليكون إلى عناقيد غنية بالهيدروجين $(SiH)_N^+$ تحدث بدقة عند $N=11$. عناقيد اصغر من $N = 11$

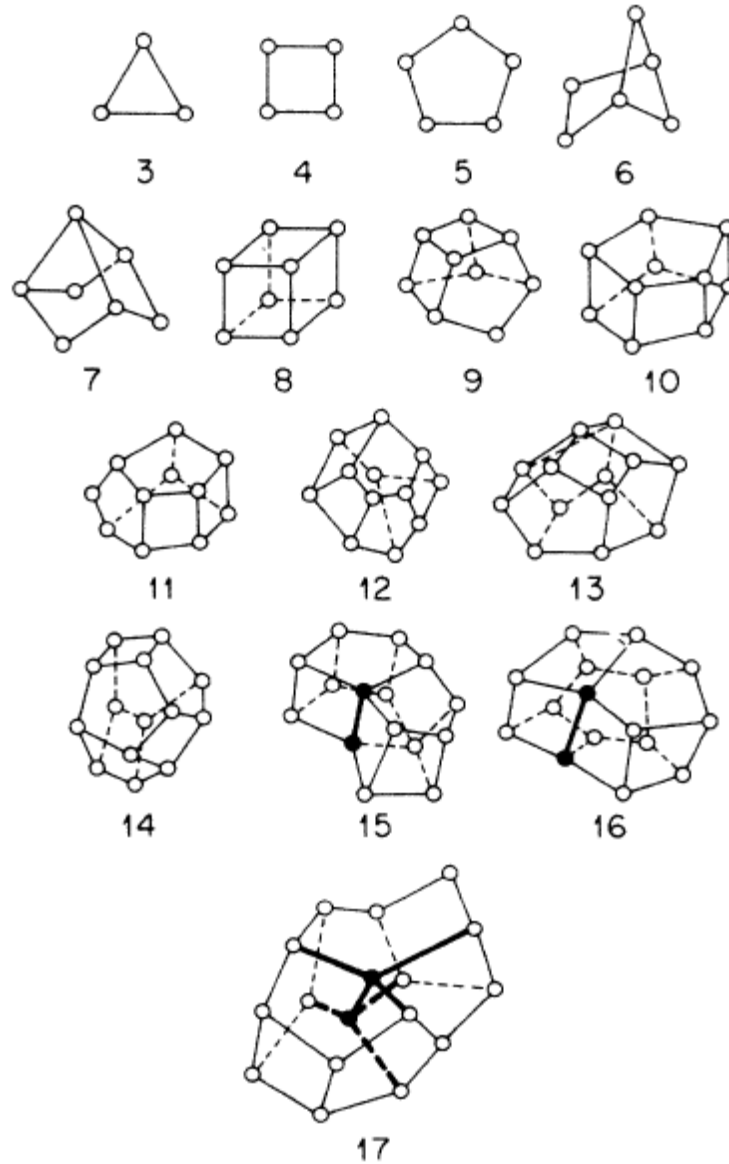
تحتاج لإضافة ذرات سليكون لكي تكون مستقر. عناقيد أكبر من $N = 11$ تمتلك عدد تناسق يساوي 3 وتميل لتلتقط ذرات هيدروجين، بمعنى ذرة H لكل ذرة Si تماما كما لوحظ في التجارب. مع زيادة حجم العناقيد فان عدد التناسق يكون أكبر ويظهر مطياف الكتلة لعناقيد Si_NH_x نسبة x/N اقل من 1. زوج Si - H على سطح العنقود يكون عادة عند مسافة 20% تقريبا اقل من الـ Si - Si. لان روابط H - H لن تتشكل [13]،



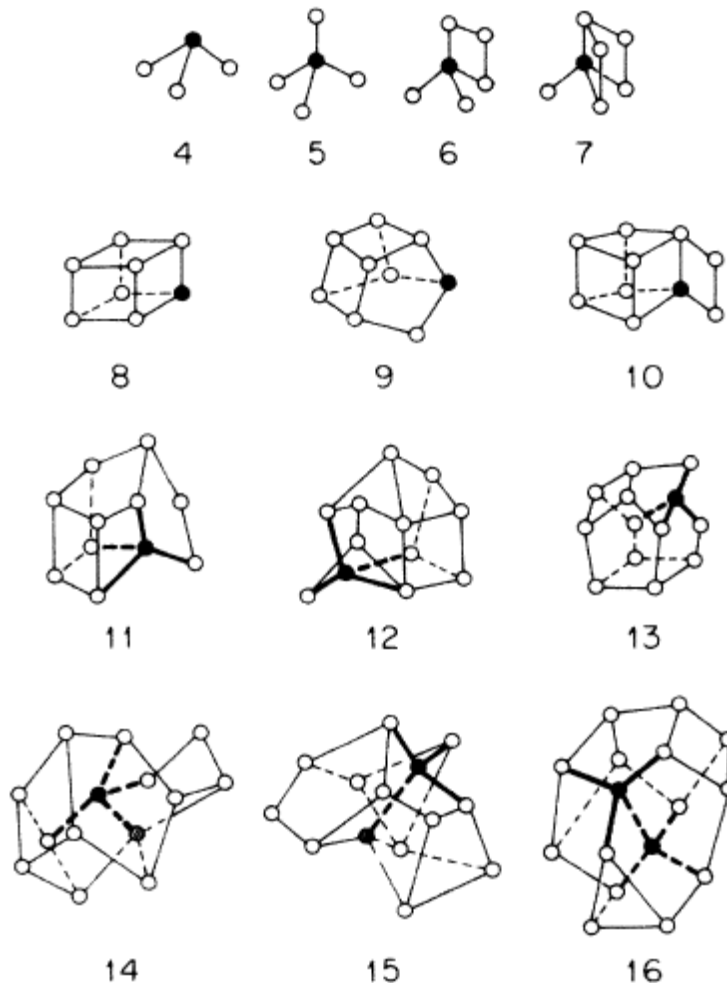
الشكل 4. متوسط عدد التناسق كدالة في عدد الذرات في العنقود. الروابط تكون عند مسافات $1.4\sigma \leq$.

وذرات الهيدروجين ليس من المحتمل ان تتغير كثير عن ما التشكيلات المذكورة سابقا لعناقيد $(Si)_N$ المتعادلة. عناقيد $(Si_NH_x)^+$ المشحونة مع $N > 11$ تتجمع اكثر من المتعادلة، وعناقيد $(Si)_N$ النقية، بينما عناقيد $(Si)_N^+$ بـ $N < 11$ تعتبر مشحونة.

الترتيبات الهندسية عند $T=0$ التي تنتج من المحاكاة مرسومة في الشكل 5 للعناقيد المتعادلة وفي الشكل 6 للعناقيد المشحونة بشحنة موجبة.



الشكل 5. تسلسل للترتيبات الأكثر استقرارا للعناقيد المتعادلة عند $T^* \sim 0$ التي تم الحصول عليها من محاكاة الديناميكا الجزيئية. الذرات المرتبطة عند مسافات $\leq 1.4\sigma$



الشكل 6. تسلسل للترتيبات الأكثر استقرارا للعناقيد المشحونة بشحنة موجبة عند $T^* \sim 0$ التي تم الحصول عليها من محاكاة الديناميكا الجزيئية. الذرات المرتبطة عند مسافات $\leq 1.4\sigma$. النقاط السوداء تقابل الذرات المشحونة.

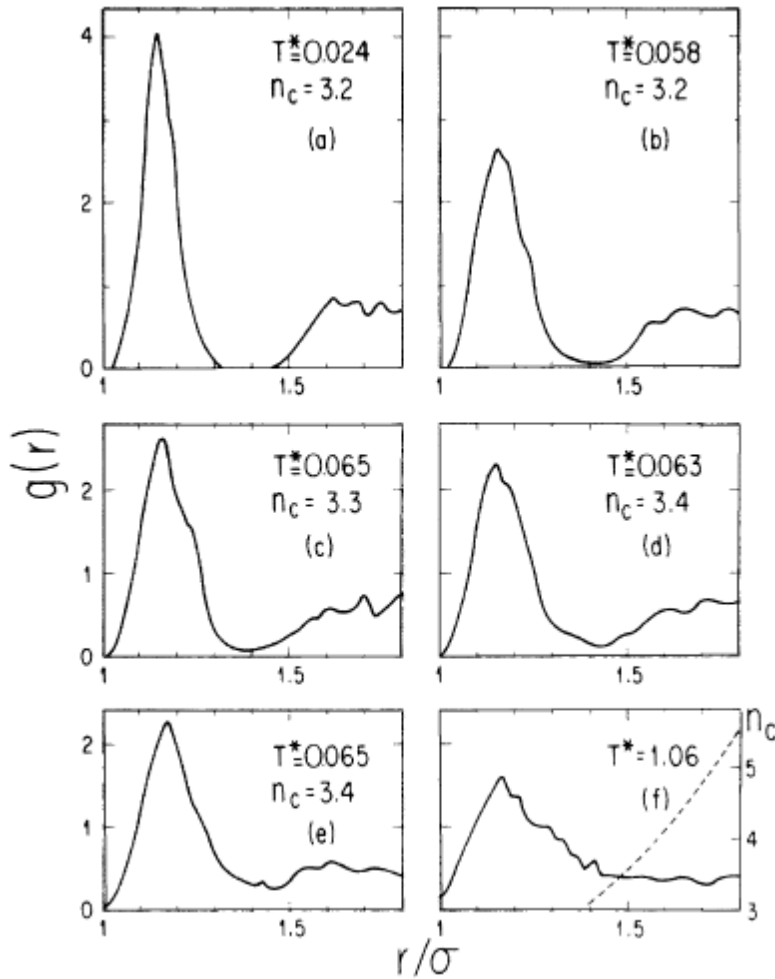
الحقت السلسلة المتعادلة بعناقيد مع $N \leq 7$ ذات الترتيبات التي تم الحصول عليها بالتخفيض الكامل لطاقة جهد العنقود باستخدام طريقة نيوتن. تميل العناقيد المتعادلة لتشكّل أوجه بأربعة أو خمسة ذرات. على أي حال من الممكن داخلاً أن توصل قمم الذرات بحلقات من 5 و 6 و 7 و 8 أعضاء حيث كل ذرة تكون مرتبطة فقط مع



ذرتين اخرتين داخل الحلقة. من الجدير بالذكر ان عناقيد ب 6 و 10 و 14 ذرة لا تسمح بتشكيل حلقات 6 اعضاء. الرابطة الرباعية الاسطح تبدأ بإنشاء عناقيد ب 15 ذرة. هناك دليل لوحدة مشوشة من 8 ذرات حيث عضوين يمتلكان اربع تناسقات (النقاط السوداء في الشكل 5). في النهاية، تبين العناقيد ب 17 وحدة داخلية ب 8 اعضاء من التماثل رباعي الاسطح مع تشويش لزاوية ثنائية السطح كافية لتشكيل حلقة ب 6 اعضاء. السلاسل المشحونة تكون مختلفة، تميل الشحنة الموجبة لافتراض عدد تناسق يساوي 4. لهذا فان وحدات الرباعية الاسطح المشوشة بخمسة ذرات تكون موجودة بشكل نادر جدا في تسلسل النمو (النقاط السوداء والروابط السميكة في الشكل 6). عندما يتطلب العنقود حجم 14 ذرة، فان وحدة الـ 8 اعضاء مع تماثل رباعي الاسطح يبدأ بالظهور. يعرض العنقود ب 16 ذرة حلقة من 6 ذرات على سطحها.

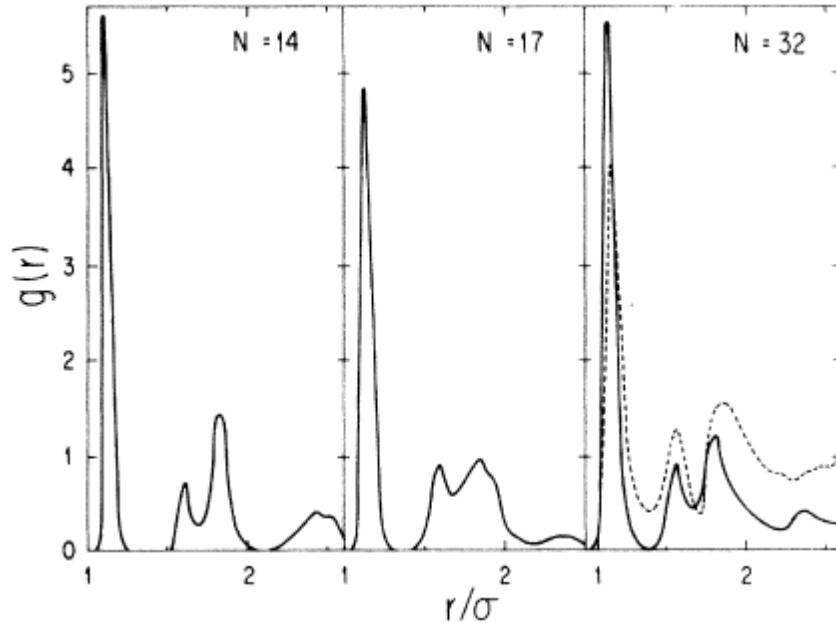
4. خواص البنية التركيبية **Structural properties**

الطريقة التقليدية لدراسة الترتيب الموضعي في الانظمة المكثفة هو تحليل دالة الترابط الزوجية $g(r)$ [11]. هذه الدالة لا تعطي الخواص مباشرة لكن تستخلص الخواص من معامل التركيب $S(k)$ الذي يتم الحصول عليه في تجارب الحيود. اجريت تجارب عديدة في الماضي لمحاولة قياس $S(k)$ للعديد من العناقيد المعزولة المختلفة [14]. على أي حال لا توجد هناك تجارب حيود على عناقيد السليكون حسب معرفة المؤلف.



الشكل 7. دالة الترابط المزدوجة لعناقيد متعادلة من 15 ذرة لكل خطوات درجة الحرارة الستة المعنونة (a) حتى (f) في الشكل 2(a).

من المهم بالرغم من ذلك انها توفر فضاء مباشر $g(r)$ في مجال توقع التجربة العلمية. يوضح الشكل 7 $g(r)$ لعناقيد متعادلة من 15 ذرة كما تم الحصول عليها من محاكاة الديناميكا الجزيئية لاجراءات التشغيل من (a) إلى (f) في الشكل 2(a). تم حساب هذه الدالة من متوسط الزمن لعدد ازواج الذرات مع مسافات فاصلة r ، و $n(r)$ متوسط r على كل الاتجاهات، أي ان



الشكل 8. دالة الترابط المزدوج عند درجات حرارة منخفضة لعناقيد متعادلة من 14 و 15 و 32 ذرة. لـ $T^*=0.015$ ، $N=17$ ، بينما لـ $T^*=0.006$ ، $N=32$. الخط المقطع في الشكل اليمين يشرح دالة الترابط المزدوجة للسائل فائق التبريد كما هو معطى في المرجع 5.

$$g(r) = n(r) / 4\pi r^2 \rho_0 . \quad (8)$$

مقارنة بين درجات الحرارة المنخفضة والمرتفعة توفر g دليل على ترتيب البنية التركيبية التي تحدث عند تسخين العنقود. عند درجات حرارة منخفضة تكون g ذات تركيب جيد، عند تحليلها مقابل N وتوضح كيف ان قشرة التناسق تنشأ في المادة الصلبة (الشكل 8). درجة الحرارة العالية لـ g قد تكون مصاحبة مع القطرات او العناقيد في الحالة السائلة. على أي حال، حيث انه لم يلحظ أي تحول في الطور من الحسابات، فانه لم يكون ممكن ايجاد درجة حرارة الانصهار. لهذا فان دراسة كمية البنية التركيبية كدالة في درجة الحرارة مثل g يمكن ان تكون مرشح جيد لتعريف العنقود السائل. تنمو اول قمة متسعة ومنخفضة عند مقارنتها مع تلك التي عند درجة الحرارة المنخفضة. قشرة التناسق الثانية تفقد تقريبا تركيبها عند المرحلة (e) والفجوة بين



قشرتي التناسق الاولى والثانية تميل لان تختفي مع زيادة T^* . المعيار للحفاظ على درجة حرارة ثابتة مثل تلك التي تعطي قطرة لحساب متوسط عدد التناسق من $g(r)$ بمعنى

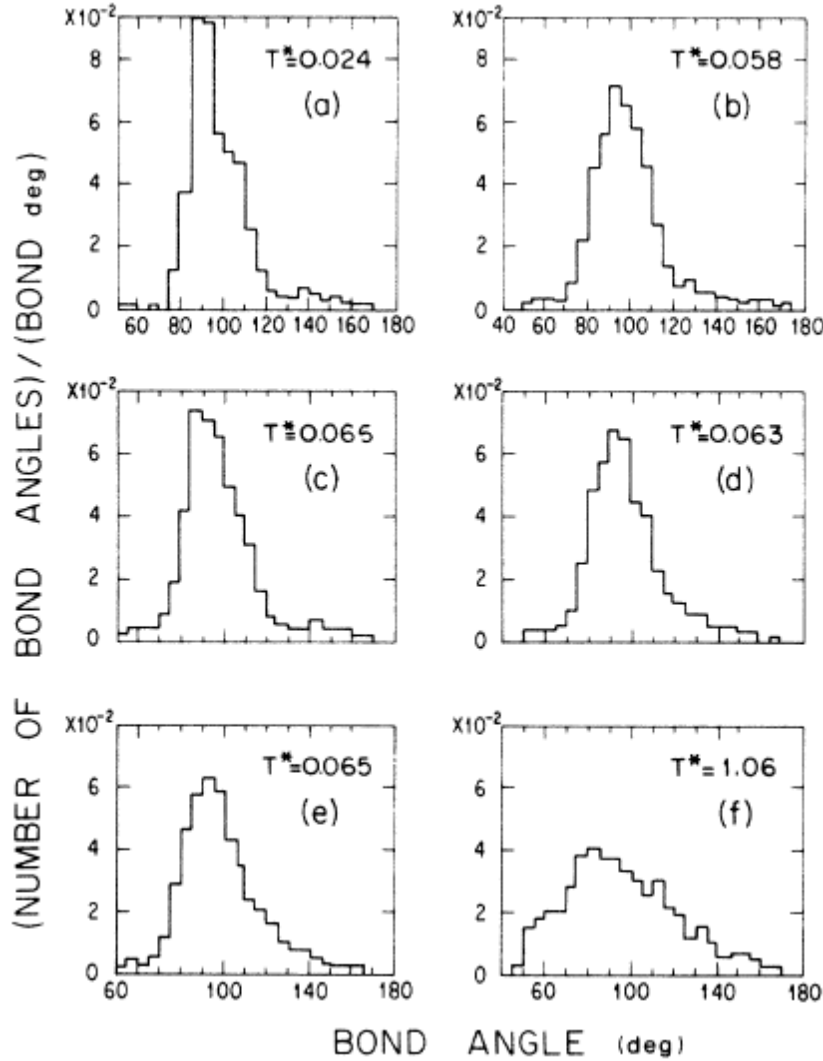
$$n_c(r_{\max}) = 4\pi\rho_0 \int_0^{r_{\max}} r^2 g(r) dr \quad (9)$$

حتى r_{\max} تساوي موضع اول قمة. فيما بعد اختر درجة حرارة التحول كدرجة حرارة عندها يحدث زيادة (او نقصان) لـ $n_c(r_{\max})$. يوضح الشكل 7 هذا السلوك لعنقود من 15 ذرة لان n_c تتغير بمقدار 8% عندما $T^* = 0.063 - 0.065$. في المرحلة (f)، ينصهر العنقود، وقشرة التناسق الثانية تتلاشى تماما واختيار r_{\max} يكون في هذه الحالة غامضا. في الشكل 7(f)، المقياس الايمن والخط المنقط، يشرح التغير في n_c مقابل $r = r_{\max}$.

اذا اختيرت نفس r_{\max} كما في المراحل السابقة، فان عدد التناسق يقل مرة اخرى إلى 3.2. هذا السلوك متوقع لان العنقود معزول في الفضاء بدون أي قيود على تمدد الفضاء. القيمة r_{\max} يمكن ان ترتبط مع متوسط طول الرابطة Si-Si لذرتي سليكون اذا كانت المسافة بين الذرات اصغر من او يساوي r_{\max} .

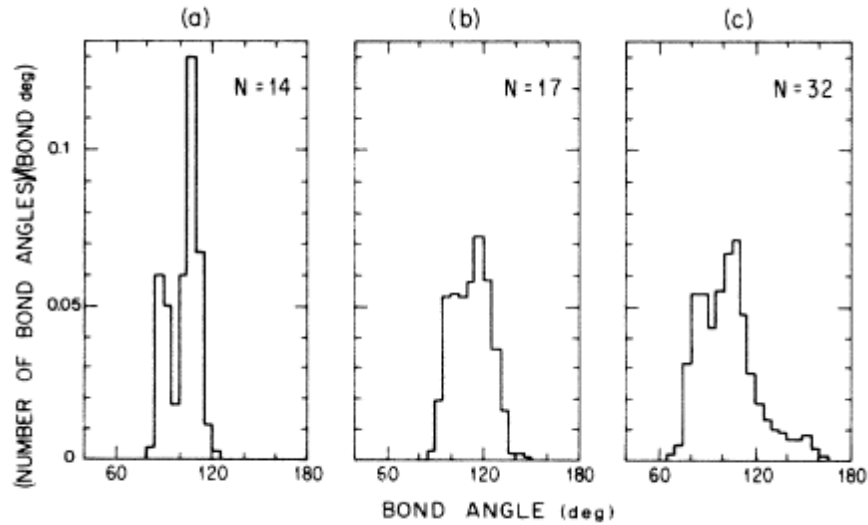
بشكل مثير، الـ g كدالة في N وعند درجات حرارة منخفضة تحمل اكثر دالة الترابط المزدوج [5] في المصهور الفائق البرودة للسليكون الكتلي. الاخير كما هو معطى في المرجع 5، يعاد انتاجه بالخط المنقط في الشكل 8(c). هذه g هي نتيجة لمخطط من نظام مكون من 216 ذرة فوق قيمة طاقة الجهد الدنيا المجاورة. البذور لبناء تلك الترتيبات ذات الطاقة الدنيا تبدو انها موجودة بالفعل في العناقيد الصغيرة التي درست في هذا البحث.

ترابط تراكيب اخرى قد تشير إلى وجود القطرات. مع الحفاظ على هذا في الذهن، دعنا نعرف زاوية الربط على انها الزاوية بين رابطتين تتقارب على نفس الذرة. يمكن استخلاص طول الرابطة من $g(r)$ كقيمة r_{\max} ، او بشكل بديل ان تكون ثابتة عند $r^* = 1.4$ ، والقيمة حيث g اول قيمة دنيا تقع عند درجات حرارة منخفضة. استخدم هذا المعيار هنا بشكل متوافق مع المناقشة السابقة لاحصائيات الرابطة في الاشكال من 3 إلى 6. توزيع الكثافة لزاويا الرابطة يمكن ان تحسب كدالة في درجة الحرارة.



الشكل 9. توزيع الكثافة لزوايا الرابطة في العنقود المتعادل من 15 ذرة لكل خطوات درجات الحرارة الستة المعنونة (a) حتى (f) في الشكل (a). تم اجراء تسوية للتوزيع ليعطي عدد الروابط في العنقود

يوضح الشكل 9 تلاشي هذا التوزيع لعنقود بـ 15 ذرة كدالة في درجة الحرارة. المستويات المختلفة (a) حتى (e) تقابل المستويات الموضحة في الشكل (a). لان التلاشي يبدأ بالظهور عند $T^* \sim 0.07$ ، فان درجة الحرارة هذه يمكن ان تعرف على انها درجة حرارة الانصهار. الزمن المستغرق بين التجمعات المتتالية للزوايا كان 0.5τ و30 ترتيب استخدم في اجراء المتوسطات. في النهاية يوضح الشكل 10 كيف ان توزيع الكثافة لزوايا الرابطة ينشأ كدالة في N في اتجاه قيم المادة الكتلية.



الشكل 10. توزيع الكثافة لزوايا الرابطة عند درجة حرارة منخفضة للعناقيد المتعادلة من 14 و 17 و 32 عنقود. تم إجراء تسوية للتوزيع ليعطي عدد الروابط في العنقود (a) و (b)، و $T^*=0.015$ ، و (c) $T^*=0.006$

5. الاستنتاج Conclusion

تم فحص واختبار سلوك نموذج جهد Weber و Stillinger في عملية انشاء سلسلة نمو عنقود معزول. اعطى هذا النموذج بنجاح الكثير من خواص السليكون الكتلي. انه من المهم ان تمتلك الان النتائج الخاصة بالمراحل المبكرة للتكتل باستخدام نموذج السليكون لإكمال وصف الاطوار المكثفة لتلك المادة. تحسينات اضافية على اختيار معاملات الجهد هو امر ممكن كما هو مقترح في المرجع 5. اعطت النتائج لهذه الدراسة معلومات اكثر يمكن ان تؤدي إلى مجموعة افضل من قيم المعاملات بالأخص لـ ϵ اذا كانت طاقة التماسك العملية للعناقيد المتوفرة بكثرة في الحالة المتعادلة معروفة.

استنتاجات جديدة ومتعددة ظهرت من هذه الدراسة. اولا جهد نموذج المواد التساهمية يجب ان تمتلك معاملات تلائم ليس فقط خواص المادة الكتلية ولكن ايضا خواص العناقيد الصغيرة المحتوية على ذرات اقل او كافية لملائمة اول قشرة تناسق. ثانيا، وجدت ان العناقيد في المراحل المبكرة من النمو لا تمتلك نقطة تماثل لأكثر البلورات استقرارا. بدلا من ذلك يكون التركيب المسيطر هو السائل (كما تم الحصول على ذلك في



المرجع 5) في عملية النمو. ثالثاً، من ان باستخدام نفس جهد نموذج العناقيد المتعادلة والمشحونة بشحنة موجبة تتكثل بشكل مختلف. يبين التسلسل المتعادل استقرار عالي لعناقيد ب 10 و 14 ذرة، بينما تسلسل المشحونة ينتج 13 و 15. يتم تحديد تسلسل النمو في تجارب المحاكاة بنفس طريقة التي في البلورة الكتلية. عل أي حال، لا يمكن استبعاد تسلسل النمو الاخرى التي تم الحصول عليها بواسطة طرق التبريد الاخرى [15]. تعريف العناقيد هنا بعناقيد حقيقية يتطلب المزيد من المعرفة عن معاملات النمو المختلفة المستخدمة في المختبر.

تمت الترجمة في المركز العلمي للترجمة

28-7-2012

www.trgma.com