

ПЛАВЛЕНИЕ СИЛИЦЕНА И ТОНКИХ КРЕМНИЕВЫХ ПЛЕНОК

Ю. Д. Фомин¹, Е. Н. Циок, В. Н. Рыжов

Институт физики высоких давлений им. Л. Ф. Верещагина РАН,
Троицк, Москва, Россия

Методами молекулярной динамики изучается плавление силицена и тонких кремниевых пленок. Показано, что температура плавления тонких пленок увеличивается при увеличении их толщины и выходит на насыщение, соответствующее температуре плавления объемного кремния, при толщине пленки в 16 атомных слоев.

Melting of silicene and thin silicon films is studied using molecular dynamics methods. It is shown that the melting temperature of thin films increases with increasing thickness and reaches saturation, corresponding to the melting temperature of bulk silicon, at a film thickness of 16 atomic layers.

PACS: 44.25.+f; 44.90.+c

ВВЕДЕНИЕ

Двумерные материалы, такие как графен, привлекают большое внимание исследователей ввиду их потенциальной перспективности в электронике. Современная электроника в основном является кремниевой. Известно, что кремний тоже может формировать тонкие структуры, называемые силиценом, который был предсказан теоретически в [1] в 1994 г., а синтезирован только в 2012 г. [2]. В настоящее время предполагается, что силицен может быть использован для улучшения таких технологий, как электроника [3], для хранения водорода [4], в литий-ионных батареях [5] и др.

Свойства силицена рассматривались в ряде экспериментальных работ (см., например, обзоры [6, 7]) и в вычислительных работах методом теории функционала плотности (см., например, [8–13]). Однако некоторые вопросы требуют условий, трудно достижимых как экспериментальными методами, так и методами квантового моделирования. К таким вопросам относится определение температуры плавления силицена. Температура плавления кремния составляет 1683 К [14]. Можно ожидать, что силицен будет плавиться при температурах, близких к этому значению, что достаточно тяжело для экспериментальных исследований. В то же время моделирование плавления требует достаточно больших систем, которые не могут быть рассмотрены в рамках метода функционала плотности. Однако такие исследования можно провести в рамках методов классической молекулярной динамики и Монте-Карло.

¹E-mail: fomin314@mail.ru

Вычисления температуры плавления силицена методами классической молекулярной динамики и Монте-Карло были проведены в ряде работ [15–19]. При этом разброс значений температуры плавления, полученных в разных работах, составляет от 1200 до 3600 К, что, очевидно, не является удовлетворительным. Целью настоящей работы является определение температуры плавления силицена и тонких кремниевых пленок в рамках метода молекулярной динамики.

1. ОПИСАНИЕ СИСТЕМЫ И МЕТОДОВ ИССЛЕДОВАНИЯ

В данной работе молекулярно-динамическое моделирование проводится с использованием потенциала Стиллинжера–Вебера [20]. Этот потенциал хорошо описывает кривую плавления кремния [21].

В работе моделировалась силиценовая пленка и тонкие многослойные пленки, окруженные вакуумом. Во всех трех измерениях применялись периодические граничные условия. Для того чтобы периодические граничные условия оказывали минимальное влияние в направлении, перпендикулярном пленкам (z -ось), размер коробки был выбран очень большим: $100a = 543\text{Å}$, где a — постоянная решетки кристаллического кремния. Элементарная ячейка силицена задается параметрами $a = b = 3,861\text{Å}$ и $\alpha = \beta = 90^\circ$ и $\gamma = 120^\circ$. В случае многослойных пленок коробка имела квадратную форму в XY -плоскости. Количество частиц в разных системах указано в таблице.

Количество атомов в моделируемых системах

Система	Число частиц	T_m , К
Силицен	20 000	875
8 слоев	4096	1450
12 слоев	6144	1700
16 слоев	8192	1725
20 слоев	10 240	1725

Во всех моделируемых системах начальная конфигурация состояла из кристаллической пленки с заданным числом слоев, окруженной вакуумом. Моделирование проводилось в каноническом ансамбле, т. е. при фиксированном числе частиц N , объеме V и температуре T . Система моделировалась при разных температурах. Шаг по времени составлял 1 фс. Моделировался временной интервал в 10 пс.

Во время моделирования отслеживалось несколько характеристик системы, таких как энергия на частицу, ширина системы, под которой мы подразумеваем разность между z -координатой самой «высокой» и самой «низкой» частиц системы, и угловые параметры порядка (в англоязычной литературе — Bond Orientational Order (BOO) parameters) q_l [22], которые характеризуют локальную структуру системы. Для описания структуры алмаза используется параметр q_3 , который для случая идеального алмазного кристалла имеет значение $q_3 = 0,745356$. Следуя работе [23], мы делим частицы системы на алмазоподобные и неупорядоченные: если для данной частицы $|q_3(i) - q_3^{id}| < 0,1$, то частица считается алмазоподобной. В противном случае она является неупорядоченной. Вычисляются также плотности вероятности параметра порядка q_3 .

Моделирование выполнялось в пакете Lammmps [24].

2. РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 показаны временные зависимости потенциальной энергии на частицу и ширины системы для случая силицена при нескольких температурах. Видно, что резкий скачок в свойствах системы происходит при $T = 875$ К, что говорит о разрушении структуры при этой температуре. При этом система не занимает весь предоставленный ей объем, а остается конденсированной.

На рис. 1 показаны конечные конфигурации системы, полученной при моделировании силицена при двух близких температурах: до разрушения структуры и после ее разрушения. Видно, что при $T = 850$ К система представляет собой дефектный кристалл. В то же время при $T = 875$ К следов кристаллической структуры не наблюдается, а сама система представляет собой неупорядоченный кластер частиц. Подобные кластеры возникают при моделировании систем конечных размеров, если они попадают в двухфазную область жидкость–газ. Таким образом, в данной ситуации разрушение силицена происходит за счет его перевода в двухфазную область.

В качестве примера плавления пленки конечной толщины на рис. 2 приведены результаты для пленки, состоящей из 12 слоев кремния. Видно, что при $T = 1675$ К

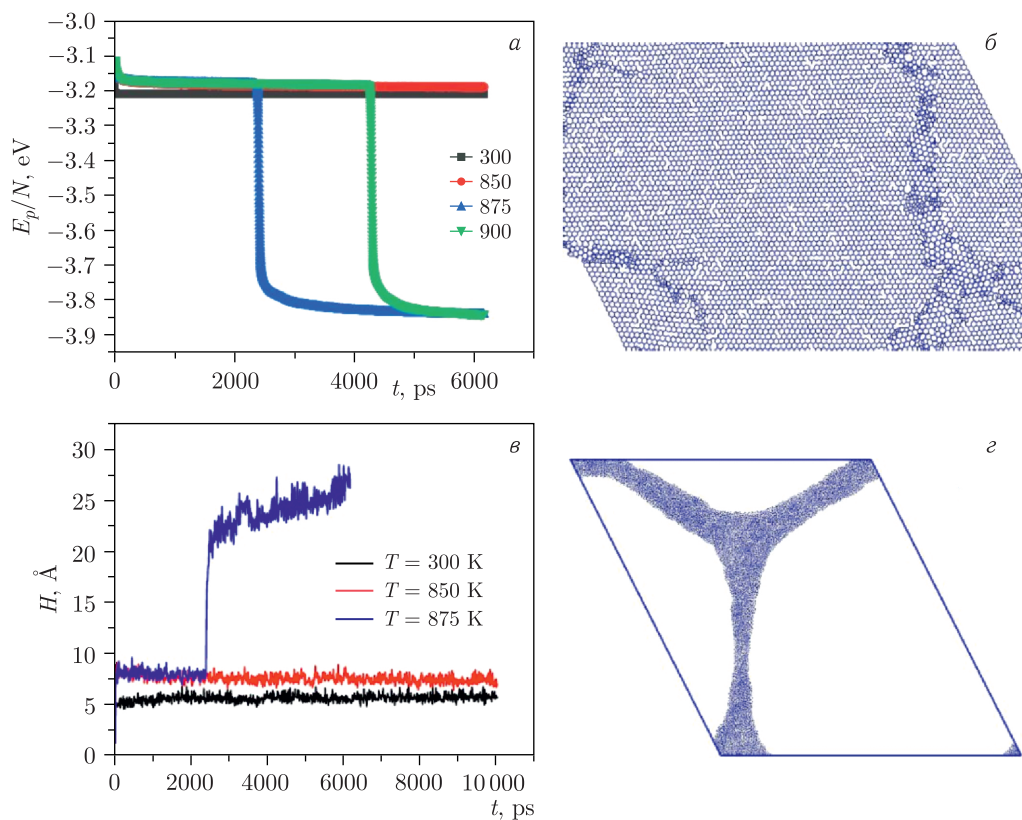


Рис. 1. а) Временная зависимость потенциальной энергии на частицу для силицена при нескольких значениях температуры; б) фотография системы при $T = 850$ К; в) аналогично а для ширины системы; г) аналогично б при $T = 875$ К

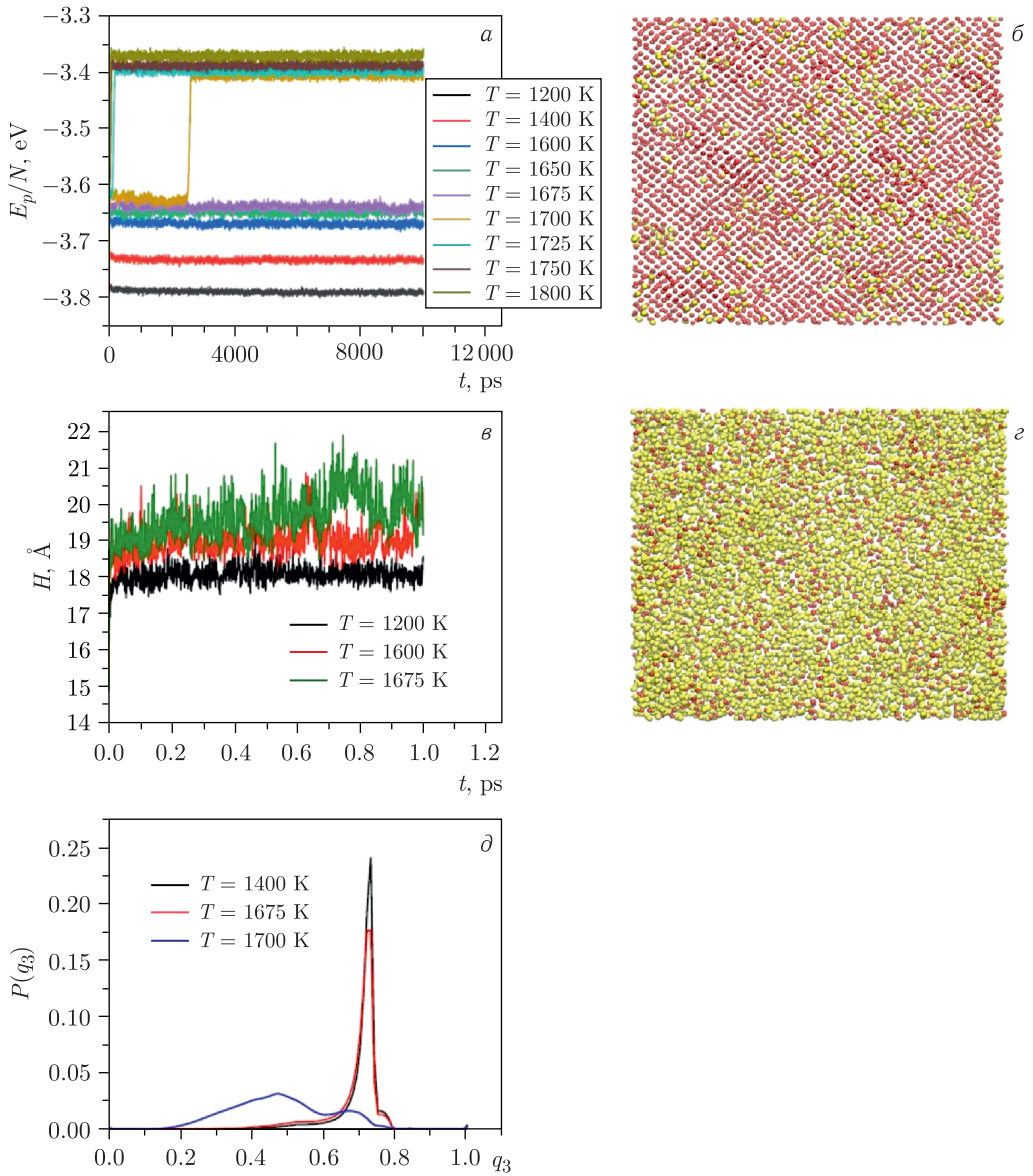


Рис. 2 (цветной в электронной версии). Система из 12 слоев кремния. а) Временная зависимость потенциальной энергии на частицу для силицена при нескольких значениях температуры. б) Фотография системы при $T = 1675$ K. Красными шарами показаны алмазоподобные частицы, а желтыми — неупорядоченные. в) Аналогично а) для ширины системы. г) Аналогично б) при $T = 1700$ K. д) Плотность вероятности параметра порядка q_3 при нескольких значениях температуры

система находится в кристаллическом состоянии: большая часть частиц системы распознается как алмазоподобные. Однако уже при $T = 1700$ К кристаллическая структура разрушилась, но система осталась в виде неупорядоченной пленки, т. е. перешла в жидкое состояние.

Температуры плавления силицена и тонких кремниевых пленок различной толщины приведены в таблице. Из полученных результатов видно, что температура плавления увеличивается с толщиной пленки и выходит на насыщение, начиная с толщины пленки в 16 слоев. Полученное значение близко к экспериментальной температуре плавления кремния, поэтому можно полагать, что, начиная с 16 слоев, температура плавления выходит на предел бесконечного кристалла.

Благодарности. Работа выполнена с использованием оборудования Межведомственного суперкомпьютерного центра и центра коллективного пользования «Комплекс моделирования и обработки данных исследовательских установок мега-класса», входящих в состав НИЦ «Курчатовский институт».

Финансирование. Данная работа финансировалась за счет средств бюджета института. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

Соблюдение этических стандартов. В данной работе отсутствуют исследования человека или животных.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kyozaburo Takeda, Kenji Shiraishi.* Theoretical Possibility of Stage Corrugation in Si and Ge Analogs of Graphite // *Phys. Rev. B.* 1994. V. 50. P. 14916.
2. *Vogt P., De Padova P., Quaresima C., Avila J., Frantzeskakis E., Carmen Asensio M., Resta A., Ealet B., Le Lay G.* Silicene: Compelling Experimental Evidence for Graphenelike Two-Dimensional Silicon // *Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 108. P. 155501.
3. *Kara A., Enriquez H., Seitsonen A. P., Lew Yan Voon L. C., Vizzini S., Aufray B., Oughaddou H.* A Review on Silicene — New Candidate for Electronics // *Surf. Sci. Rep.* 2012. V. 67. P. 1–18.
4. *Jose D., Datta A.* Structures and Electronic Properties of Silicene Clusters: A Promising Material for FET and Hydrogen Storage // *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2011. V. 13. P. 7304.
5. *Oughaddou H., Enriquez H., Rachid Tchalala M., Yildirim H., Mayne A. J., Bendounan A., Dujardin G., Ait Ali M., Kara A.* Silicene, a Promising New 2D Material // *Surf. Sci. Rep.* 2015. V. 90. P. 46–83.
6. *Jijun Zhao et al.* Rise of Silicene: A Competitive 2D Material // *Prog. Mater. Sci.* 2016. V. 83. P. 24–151.
7. *Dávila M. E., Le Lay G.* Silicene: Genesis, Remarkable Discoveries, and Legacy // *Mater. Today Adv.* 2022. V. 16. P. 100312.
8. *Guzmán-Verri G. G., Lew Yan Voon L. C.* Electronic Structure of Silicon-Based Nanostructures // *Phys. Rev. B.* 2007. V. 76. P. 075131.
9. *Cahangirov S., Topsakal M., Aktürk E., Sahin H., Ciraci S.* Two- and One-Dimensional Honeycomb Structures of Silicon and Germanium // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 102. P. 236804.

10. *Ding Yi, Ni J.* Electronic Structures of Silicon Nanoribbons // *Appl. Phys. Lett.* 2009. V. 95. P. 083115.
11. *Zhang H., Wang R.* The Stability and the Nonlinear Elasticity of 2D Hexagonal Structures of Si and Ge from First-Principles Calculations // *Phys. B: Condens. Matter.* 2011. V. 406. P. 4080–4084.
12. *Ngoc Thanh Thuy Tran, Gumbs G., Duy Khanh Nguyen, Lin Ming-Fa.* Fundamental Properties of Metal-Adsorbed Silicene: A DFT Study // *ACS Omega.* 2020. V. 5, No. 23. P. 13760–13769.
13. *Vo Van On, Nguyen Thanh Hung, Dang Thi Khanh Huyen, Le Thi Phuong Trinh, Le Vo Phuong Thuan.* Investigation of DFT on the Structural and Electronic Properties of Silicene Nanoribbons when Adsorption of Li, H, Fe // *Mater. Today.* 2022. V. 49. P. 2414–2418.
14. *Haynes W.M.* 2014 DR 2014–2015 CRC Handbook of Chemistry and Physics. Boca Raton, FL: CRC Press, 2014. P. 4–87.
15. *Bocchetti V. et al.* Thermal Stability of Standalone Silicene Sheet // *J. Phys.: Conf. Ser.* 2014. V. 491. P. 012008.
16. *Das D.K., Sarkar J.* Multiscale Modeling of Thermal Properties of Silicene Using Molecular Dynamics // *Mod. Phys. Lett. B.* 2018. V. 32. P. 1850331.
17. *Tjun Kit Min et al.* Molecular Dynamics Simulation of Melting of Silicene // *Mater. Res. Express.* 2018. V. 5. P. 065054.
18. *Berdiyorov G.R., Peeters F.M.* Influence of Vacancy Defects on the Thermal Stability of Silicene: A Reactive Molecular Dynamics Study // *RSC Adv.* 2014. V. 4. P. 1133.
19. *Vo Van On.* To Study the Structure and Thermodynamic Properties of Silicene Materials When Melting Quickly by Molecular Dynamics Simulation // *J. Phys.: Conf. Ser.* 2020. V. 1706. P. 012023.
20. *Stillinger F.H., Weber Th.A.* Computer Simulation of Local Order in Condensed Phases of Silicon // *Phys. Rev. B.* 1985. V. 31. P. 5262–5271.
21. *Dozhdikov V.S., Basharin A. Yu., Levashov P.R.* // *J. Chem. Phys.* 2012. V. 137. P. 054502.
22. *Steinhardt P.J., Nelson D.R., Ronchetti M.* Bond-Orientational Order in Liquids and Glasses // *Phys. Rev. B.* 1983. V. 28. P. 784.
23. *Fomin Yu.D.* Between Two and Three Dimensions: Crystal Structures in a Slit Pore // *J. Colloid Interface Sci.* 2020. V. 580. P. 135–145.
24. *Plimpton S.* Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics // *J. Comput. Phys.* 1995. V. 117. P. 1–19.

Получено 31 октября 2024 г.