

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ И МАТЕРИАЛОВ

SIMULATION OF PROCESSES AND MATERIALS

*Известия высших учебных заведений. Материалы электронной техники. 2015. Т. 18, № 4. С. 267–272.
ISSN 1609–3577. DOI: 10.17073/1609-3577-2015-4-267-272*

УДК 544.022.341:621.315.592

МОЛЕКУЛЯРНО–ДИНАМИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ НАЧАЛЬНЫХ ЭТАПОВ ПРОЦЕССА НИТРИДИЗАЦИИ ПОВЕРХНОСТИ Si(111) В АТМОСФЕРЕ NH₃

© 2015 г. К. К. Абгарян, Ю. Г. Евтушенко,
И. В. Мутигуллин, С. И. Уваров

*Вычислительный центр им. А. А. Дородницына
Федерального исследовательского центра
«Информатика и управление» РАН,
ул. Вавилова, д. 40, Москва, 119333, Россия*

Проведено молекулярно–динамическое (МД) моделирование процесса осаждения одиночной молекулы аммиака на поверхность (111) кремния. Для решения поставленной задачи применена процедура параметрической идентификации потенциалов межатомного взаимодействия для описываемой системы атомов. Для проведения МД–расчетов разработано программное обеспечение, позволяющее осуществлять оптимизацию геометрии исследуемых структур, а также визуализировать получаемые результаты. Для верификации результатов МД–моделирования проведены квантово–механические расчеты на супер–ЭВМ. Получены значения параметров потенциалов межатомного взаимодействия, которые позволяют строить потенциалы, пригодные для использования в дальнейших расчетах по моделированию процесса адсорбции молекулы аммиака на поверхности кремния. В частности, с их помощью корректно воспроизводятся результаты первопринципного моделирования взаимодействия адсорбированного атома азота с поверхностью кремния и энергетика процесса адсорбции. С помощью потенциала Терсофа со значениями параметров, полученными в результате параметрической идентификации, удалось смоделировать положение с наименьшей полной энергией. Это положение соответствует наиболее энергетически предпочтительному размещению адсорбированного атома азота при адсорбции.

Ключевые слова: молекулярно–динамическое моделирование, первопринципные расчеты, потенциал межатомного взаимодействия, кремний, аммиак, нитридизация, молекулярная динамика.

Введение

Выбор материала подложки, исследование его поверхностных свойств и структурных особенностей — это один из важных этапов в процессе выращивания новых многослойных полупроводниковых материалов. Такие материалы для наноэлектроники получают методами осаждения металлорганических соединений из газообразной фазы (MOCVD), а также аммиачной или плазменной молекулярно–лучевой эпитаксии (МЛЭ). Сегодня в качестве основы для нанесения эпитаксиальных слоев используют такие соединения, как Si, SiC, Al₂O₃, Si₃N₄ и т. д. К числу наиболее популярных материалов можно отнести кремний и сапфир. Следует отметить, что при осаждении азотсодержащих химических соединений на подложку происходит нитридизация поверхности, оказывающая влия-

ние на процесс дальнейшего роста нитридной структуры, а также на ее качество. Процессу нитридизации, как одному из первых этапов роста нитридных структур на поверхности (0001) Al₂O₃, посвящено много теоретических и экспериментальных работ. Так, в работах [1, 2] приведены результаты квантово–механических расчетов адсорбции атомарного азота на поверхности (0001) сапфира на базе теории функционала плотности [3, 4]. Показано, что при увеличении концентрации азота на поверхности становится энергетически более выгодным замещение атомов кислорода подложки атомами азота. Это может быть первым этапом процесса образования нитрида алюминия. Данный результат позволил улучшить понимание механизма процесса нитридизации сапфира на атомном уровне.

Не менее важным является процесс образования нитрида

Абгарян Каринэ Карленовна — кандидат физ.–мат. наук, зав. отделом, e-mail: kristal83@mail.ru; **Евтушенко Юрий Гаврилович** — директор, e-mail: evt@ccas.ru; **Мутигуллин Илья Васильевич** — кандидат физ.–мат. наук, старший научный сотрудник, e-mail: mutigul@ccas.ru; **Уваров Сергей Игоревич** — младший научный сотрудник, e-mail: seruv25@gmail.com

кремния на первых этапах роста нитридных полупроводниковых структур на кремниевой подложке. Известно, что нитрид кремния (Si_3N_4) обладает такими уникальными свойствами, как высокое удельное сопротивление (10^{16} Ом/см) и высокое пробивное напряжение (10^7 В/см) [5]. Это важно для определения рабочих режимов электронных компонентов, полученных на базе нитридных гетероструктур. В работах [5, 6] представлены результаты экспериментального исследования процесса нитридации поверхности Si(111). В частности, в работе [5] исследована кинетика и механизмы формирования высокоупорядоченной фазы (8×8) на начальных стадиях нитридации Si(111) в потоке аммиака методом дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО).

Экспериментальное исследование самых ранних стадий нитридации на атомарном уровне связано с большим количеством технических сложностей. Поэтому представляется актуальным проведение компьютерного моделирования процесса образования нитрида кремния в результате нитридации поверхности кремния в потоке аммиака. Ниже рассмотрено моделирование взаимодействия одиночной молекулы аммиака с поверхностью кремния с помощью молекулярно-динамического расчета.

Представлены отдельные результаты молекулярно-динамического моделирования (МД-моделирования) начальных этапов процесса нитридации поверхности Si(111) в потоке аммиака. Рассмотрен процесс адсорбции молекулы аммиака NH_3 на поверхности данного полупроводника и внедрения атома азота в его структуру.

Описание модели

Моделирование разложения молекулы NH_3 и изменения структуры поверхности Si(111) во времени проводится с применением гибридных алгоритмов. Такие алгоритмы включают в себя методы молекулярной динамики [7] и оптимизационные методы [8, 9], с помощью которых подбирают оптимальные значения параметров потенциалов межатомного взаимодействия. В качестве эталонных рассмотрены результаты первопринципных расчетов, проведенных в рамках теории функционала плотности. Для моделирования поверхности кремния в качестве потенциала межатомного взаимодействия использован многочастичный потенциал Терсофа [10], хорошо зарекомендовавший себя при решении задач моделирования соединений с ковалентными связями. Когезионную энергию E системы атомов моделируемого материала в рамках данного подхода можно рассчитать по формуле.

$$E = \sum_i E_i = \frac{1}{2} \sum_i U_{ij}. \quad (1)$$

В уравнении (1) суммируются значения когезионной энергии E_i взаимодействующих пар атомов

рассматриваемой системы, которые определяют с помощью потенциала взаимодействия U_{ij} между атомами (в Дж):

$$U(r_{ij}) = f_c(r_{ij})[f_R(r_{ij}) + b_{ij}f_A(r_{ij})], \quad (2)$$

где f_R, f_A — потенциалы притяжения и отталкивания между двумя атомами,

$$f_R(r_{ij}) = \frac{D_e}{S-1} \exp[-\beta\sqrt{2S}(r_{ij} - r_e)]; \quad (3)$$

$$f_A(r_{ij}) = \frac{SD_e}{S-1} \exp\left[\beta\sqrt{\frac{2}{S}}(r_{ij} - r_e)\right]; \quad (4)$$

f_c — гладкая функция отсечения с параметрами потенциала Терсофа (в эВ) R и D , которые выбираются таким образом, чтобы включать ближайших соседей:

$$f_c(r_{ij}) = \begin{cases} 0, & r_{ij} > (R + D) \\ \frac{1}{2} \left[1 - \sin\left[\frac{\pi(r_{ij} - R)}{2D}\right] \right], & |r_{ij} - R| \leq D; \\ 1, & r_{ij} < (R - D) \end{cases} \quad (5)$$

b_{ij} — параметр, который показывает, как энергия зависит от расположения атома относительно соседних атомов,

$$b_{ij} = \left[1 + (\beta\zeta_{ij})^n \right]^{-\frac{1}{2n}}; \quad (6)$$

$$\zeta_{ij} = \sum_{k \neq i, j} f_c(r_{ik})g(\theta_{ijk})\omega_{ij}; \quad (7)$$

$$\omega_{ij} = \exp\left[\lambda^3(r_{ij} - r_{ik})^3\right]; \quad (8)$$

$$g(\theta_{ijk}) = 1 + \frac{c^2}{d^2} - \frac{c^2}{d^2 + [h - \cos(\theta_{ijk})]^2}; \quad (9)$$

$$\cos(\theta_{ijk}) = \frac{(x_{ij}x_{ik}) + (y_{ij}y_{ik}) + (z_{ij}z_{ik})}{r_{ij}r_{ik}}; \quad (10)$$

$$r_{ij} = \sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}; \quad (11)$$

D_e — параметр потенциала Терсофа, эВ; γ — параметр потенциала Терсофа (безразмерный); β, λ — параметры потенциала Терсофа, Å; S, c, d, h — параметры потенциала Терсофа (безразмерные).

Для описания взаимодействия атомов азота и водорода, образующих молекулу NH_3 , применяли потенциал Леннарда-Джонса:

$$U(r_{ij}) = 4\xi \left[\left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 \right], \quad (12)$$

где r — расстояние между центрами частиц; σ, ξ — параметры потенциала Леннарда-Джонса, эВ.

Параметры обоих потенциалов определяются в результате применения оптимизационных алгоритмов параметрической идентификации, описанных в работах [7, 8] для конкретных атомарных структур: поверхности Si (111), SiN и молекулы NH₃.

Как было показано в работе [7], первоначально формируется целевая функция следующего вида:

$$F(\xi) = \sum_{i=1}^l \omega_i [f_i(\xi) - \hat{f}_i]^2 \rightarrow \min, \xi \in X, \quad (13)$$

где \hat{f}_i — эталонное значение i -й характеристики; $f_i(\xi)$ — значение характеристики, полученное в результате расчетов для заданного набора базисных атомов; $\xi \in R^n$ — вектор подбираемых параметров; ω_i — весовой коэффициент. Допустимое множество $X \subseteq R^n$ является параллелепипедом, границы которого выбираются таким образом, чтобы заведомо содержать возможный диапазон параметров. В задаче (13) требуется определить набор параметров $\xi \in R^n$, минимизирующих значение функции $F(\xi)$. Такой набор должен обеспечивать минимальное отклонение рассчитанных характеристик материала от эталонных значений, полученных с помощью эксперимента или квантово-механических расчетов в рамках теории функционала электронной плотности [3, 4] с использованием базиса плоских волн и PAW-потенциалов (программным комплексом VASP [11]). Таким образом, решив данную задачу, удастся наиболее точно описать свойства исследуемого материала с помощью потенциалов с подобранными параметрами. Задача существенно усложняется при переходе от однокомпонентных (решение данной задачи приведено в работе [7]) к двухкомпонентным и многокомпонентным материалам. Это связано с существенным увеличением числа оптимизируемых параметров, что приводит к соответствующим усложнениям в решении многопараметрической оптимизационной задачи, а также к увеличению времени поиска наборов параметров, на которых достигается минимум функционала.

Необходимо отметить, что за счет усложнения целевой функции при введении в нее дополнительных слагаемых, при неизменном числе атомов в химической формуле, можно повысить однозначность идентификации значений параметров потенциалов. Для оптимизации функционала (13) ниже рассмотрены случаи, когда l принимает значения от 1 до 3 и в качестве характеристик использованы значения когезионной энергии, постоянной решетки, объемного модуля упругости. Рассматриваются двухкомпонентные материалы нитрид кремния и аммиак. При расчете значений модуля упругости применен метод конечных разностей и технология быстрого автоматического дифференцирования [12]. Эта технология позволяет рассчитывать значения первых и вторых производных сложных функций с большой точностью. С ее помощью стало возможным применить для решения оптимизационной задачи (13) не только

методы нулевого порядка (метод Нелдера—Мида [13] Granular Radial Search [14]), но и метод сопряженных градиентов [15]. Технология быстрого автоматического дифференцирования требует дополнительных арифметических операций. Однако расчеты показали, что за счет высокой скорости сходимости метода сопряженных градиентов удается идентифицировать наборы параметров для потенциала Терсофа с вычислительными затратами, сравнимыми с методами нулевого порядка.

Потенциалы с идентифицированными параметрами используют в процессе МД-моделирования, в котором местоположение и скорость взаимодействующих атомов системы определяют путем интегрирования системы обыкновенных дифференциальных уравнений, и описывают в рамках классической динамики:

$$\begin{cases} m_n \frac{du_n}{dt} = f_{ij}^x; \\ m_n \frac{dv_n}{dt} = f_{ij}^y; \\ m_n \frac{dw_n}{dt} = f_{ij}^z; \\ \frac{dx_n}{dt} = u_n; \\ \frac{dy_n}{dt} = v_n; \\ \frac{dz_n}{dt} = w_n. \end{cases} \quad (14)$$

Здесь $n \in [1, N]$; t — время, с; m_n — масса n -го атома; F_n — сила, действующая на частицу с номером n ;

$$\begin{aligned} f_{ij}^x &= -\frac{\partial U_{ij}}{\partial x_i}; \\ f_{ij}^y &= -\frac{\partial U_{ij}}{\partial y_i}; \\ f_{ij}^z &= -\frac{\partial U_{ij}}{\partial z_i}; \end{aligned} \quad (15)$$

$$r_{ij} = \sqrt{(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2 + (z_i - z_j)^2};$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial U_{ij}}{\partial x_i} &= \frac{\partial U_{ij}}{\partial r_{ij}} \frac{\partial r_{ij}}{\partial x_i} = \frac{\partial U_{ij}}{\partial r_{ij}} \frac{x_i - x_j}{r_{ij}}, \\ \frac{\partial U_{ij}}{\partial y_i} &= \frac{\partial U_{ij}}{\partial r_{ij}} \frac{\partial r_{ij}}{\partial y_i} = \frac{\partial U_{ij}}{\partial r_{ij}} \frac{y_i - y_j}{r_{ij}}, \\ \frac{\partial U_{ij}}{\partial z_i} &= \frac{\partial U_{ij}}{\partial r_{ij}} \frac{\partial r_{ij}}{\partial z_i} = \frac{\partial U_{ij}}{\partial r_{ij}} \frac{z_i - z_j}{r_{ij}}, \end{aligned} \quad (16)$$

где $i, j \in [1, N]$; U — потенциал взаимодействия между двумя атомами.

Для решения поставленной задачи Коши использовали метод скоростей Верле второго порядка точности [16]. Его численная схема представляется оптимальной по соотношению точность—производительность. В методе скоростей Верле все координаты, скорости и ускорения частиц вычисляются в моменты времени, кратные временному шагу интегрирования:

$$r(t + \Delta t) = r(t) + v(t)\Delta t + \frac{1}{2}a(t)\Delta t^2; \quad (17)$$

$$v(t + \Delta t) = v(t) + \frac{1}{2}[a(t + \Delta t) + a(t)]\Delta t. \quad (18)$$

Необходимо отметить, что в методе скоростей Верле погрешность метода приводит только к изменению частоты колебания, а амплитуда колебаний и энергия системы остаются практически без изменений. Таким образом, данный алгоритм хорошо подходит для вычислений с крупным шагом и на достаточно протяженных расчетных интервалах.

Для исследования точности определения параметров потенциалов межатомного взаимодействия требуется проведение большого числа экспериментов и построение распределения отклонений параметров по большой выборке при МД-моделировании, а также при проведении квантово-механических расчетов. Поэтому при построении подобных вычислительных алгоритмов применяли технологии параллельных и распределенных вычислений, в том числе на супер-ЭВМ.

Численный эксперимент и решение прикладной задачи

Прежде всего необходимо провести параметрическую идентификацию потенциалов, выбранных для описания межатомного взаимодействия в рамках МД-расчетов. В качестве систем, структурные и энергетические свойства которых использовали при определении параметров потенциалов, были выбраны молекула NH_3 и монокристалл кремния. Эталонные значения указанных свойств, которые использовали в записи целевой функции, минимизируемой в процессе параметрической идентификации, получены в результате первопринципных расчетов в рамках теории функционала плотности. Получен-

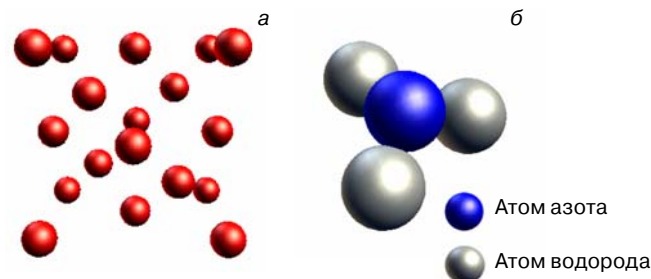


Рис. 1. Ячейка кремния (а) и молекула аммиака (б)
Fig. 1. (a) Silicon Unit Cell and (b) Ammonium Molecule

ные параметры потенциалов для каждой из атомных систем приведены ниже.

– параметры потенциала Леннарда—Джонса для молекулы аммиака

$\xi_{\text{H-H}}$, эВ	$1,65 \cdot 10^{-11}$
$\xi_{\text{N-H}}$, эВ	$1,65 \cdot 10^{-11}$
$\sigma_{\text{H-H}}$, нм	$7,4 \cdot 10^{-6}$
$\sigma_{\text{N-H}}$, нм	$3,4 \cdot 10^{-7}$

– параметры потенциала Терсофа для кремния

D_e , эВ	2,367	γ	$5,86 \cdot 10^{-6}$
R_e , нм	0,23283	λ	1,202
β , нм	0,12629	c	112974
S	0,0124	d	14,281
n	2,6353	h	0,7220

В ходе моделирования процесса адсорбции аммиака на поверхности кремния была построена кристаллическая решетка кремния. Расчетная ячейка состояла из 415 атомов. Для моделирования поверхности кремния часть атомных слоев, образующих идеальную монокристаллическую структуру, была удалена. Таким образом, атомы на верхней и на нижней поверхностях ячейки оказались разделены слоем вакуума. Значение температуры, при которой осуществлялся численный эксперимент, считали равным 273 К.

В первую очередь были проведены расчеты релаксации межатомных расстояний в двух исследуемых структурах: кристаллической решетке кремния и молекуле NH_3 (рис. 1). Значение постоянной решетки кремния составило 0,354 нм, что близко к известным экспериментальным данным. Для молекулы аммиака были рассчитаны расстояния между атомами азота и водорода — 0,09 нм, а также между атомами водорода — 0,15 нм. Углы между атомами составили 107° .

С целью параметрической идентификации потенциала для описания молекулы аммиака на поверхности кремния проведены расчеты из первых принципов энергии адсорбции одиночного атома азота в различных высокосимметричных позициях на поверхности кремния (111). Полученные полные энергии систем использовали в качестве эталонных значений при записи целевой функции. В результате получили набор параметров потенциала Терсофа для системы Si—N, удовлетворяющий минимуму целевой функции:

– параметры потенциала Терсофа для системы Si—N

$D_{e\text{Si}}$	2,2646	β_{N}	1,00016
$D_{e\text{N}}$	1,8293183	$R_{e\text{Si-N}}$	0,900482
S_{Si}	1,1894	$R_{e\text{Si-Si}}$	2,8178
S_{N}	1,67044	$n_{\text{Si-N}}$	0,79023
β_{Si}	11,9454	$n_{\text{Si-Si}}$	0,8996

– параметры потенциала Терсофа для системы Si—N

$\gamma_{\text{Si-N}}$0,000003129	$c_{\text{Si-Si-Si}}$80322,595
$\gamma_{\text{Si-Si}}$0,000001246	$d_{\text{Si-Si-N}}$16,3541
$\lambda_{\text{Si-N}}$1,4652	$d_{\text{Si-Si-Si}}$28,8887
$\gamma_{\text{Si-Si}}$1,4598	$h_{\text{Si-N}}$-1,2756
$c_{\text{Si-Si-N}}$31193,63	$h_{\text{Si-Si}}$-0,423876

Проведено МД-моделирование атомов азота в тех же позициях адсорбции на поверхности кремния. Продемонстрировано, что расчетный потенциал корректно описывает результаты первопринципного моделирования взаимодействия адсорбированного атома азота с поверхностью кремния и воспроизводит энергетику процесса адсорбции. В частности, положение с наименьшей полной энергией, соответствующее наиболее энергетически предпочтительному размещению адсорбированного атома азота при адсорбции удалось воспроизвести с помощью полученного потенциала. Таким образом, полученный потенциал пригоден для использования в дальнейших расчетах с целью моделирования адсорбции молекулы аммиака на поверхности кремния.

С использованием полученного потенциала проведены предварительные расчеты, моделирующие поведение молекулы аммиака на поверхности Si(111). Полагали, что молекула аммиака расположена над поверхностью кремния в середине вакуумного слоя, и ее начальная скорость направлена перпендикулярно к поверхности подложки (рис. 2).

При достижении поверхности молекула аммиака начинает диссоциировать. При этом атом азота адсорбируется на поверхности кремния, атомы водорода покидают поверхность. Этот предварительный результат согласуется с ожидаемым поведением азота на поверхности, поскольку адсорбция атомов азота должна предшествовать образованию нитридного соединения в поверхностном слое подложки. В дальнейшем для усовершенствования модели и более полного описания первых этапов процесса ни-

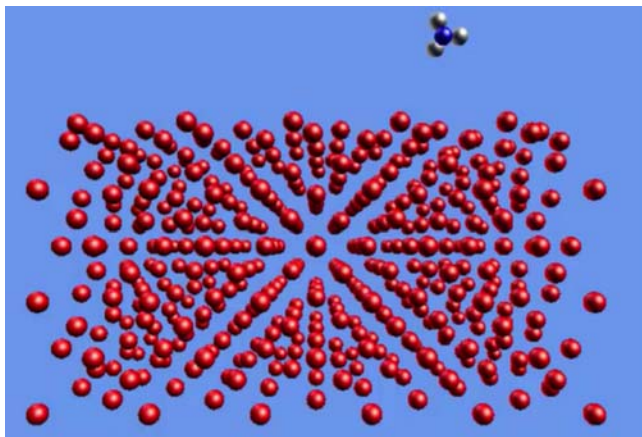


Рис. 2. Изображение исследуемой ячейки. Молекула аммиака расположена над поверхностью кремния (111)

Fig. 2. Unit Cell Being Modeled. The Ammonium Molecule is above (111) Silicon Surface

тридизации планируется следующее. Во-первых, провести определение параметров потенциалов Терсофа для описания всех взаимодействующих компонент (Si, N, H). Во-вторых, увеличить концентрации молекул аммиака в системе.

Следует отметить, что разработанное программное обеспечение позволяет визуализировать каждый расчетный шаг. Таким образом, формируется фильм, демонстрирующий динамику описываемых процессов.

Заключение

Представлены результаты МД-моделирования процесса осаждения одиночной молекулы аммиака на поверхность кремния Si(111). Этот процесс является первым этапом нитридации поверхности, возникающим при выращивании нитридных полупроводниковых структур на кремниевой подложке. МД-моделирование проведено с помощью полуэмпирических потенциалов, параметры которых определены в результате процедуры параметрической идентификации. При этом в качестве эталонных рассмотрены результаты первопринципных расчетов. В рамках примененной модели показано, что в результате осаждения молекулы аммиака атом азота адсорбируется на поверхность кремния. Это можно рассматривать как первую стадию процесса нитридации подложки. С целью проведения МД-расчетов в рамках проекта разработано программное обеспечение, позволяющее осуществлять оптимизацию геометрии исследуемых структур, а также визуализировать получаемые результаты. Верификация результатов МД-моделирования проведена путем сравнения соответствующих данных, полученных двумя различными методами моделирования.

Библиографический список

1. **Abgaryan, K. K.** The simulation of the nitridation of the sapphire surface (001) / K. Abgaryan, D. Bazanov, I. Mutigillin // Mater. XXI Internat. Conf. «Interaction of ions with the surface» (ISI-2013). – Yaroslavl, 2013. – V. 2. – P. 99–103.
2. **Абгарян, К. К.** Исследование адсорбции атомарного азота на поверхности Al_2O_3 (0001) / К. К. Абгарян, Д. И. Бажанов, И. В. Мутигуллин // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. – 2013. – № 1. – С. 80–85. DOI: 10.7868/S0207352813010022
3. **Hohenberg, P.** Inhomogeneous electron gas / P. Hohenberg, W. Kohn // Phys. Rev. – 1964. – V. 136. – P. B864. DOI: 10.1103/PhysRev.136.B864
4. **Kohn, W.** Self-consistent equations including exchange and correlation effects / W. Kohn, L. J. Sham // Phys. Rev. – 1965. – V. 140. – P. A1133–A1138. DOI: 10.1103/PhysRev.140.A1133
5. **Мансуров, В. Г.** Образование упорядоченной фазы (8x8) SiN и аморфной фазы Si_3N_4 на поверхности (111)Si в потоке аммиака / В. Г. Мансуров, Ю. Г. Галицын, Т. В. Малин, К. С. Журавлев // Тез. докл. XII Российской конференции по физике полупроводников. – М.: Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 2015. – С. 456.
6. **Wang, X.-S.** Nitridation of Si(111) / X.-S. Wang, G. Zhai, J.-S. Yang, L. Wang, Y. Hu, Z. Li, J. C. Tang, K. K. Fung, N. Cue // Surf. Sci. – 2001. – V. 494, N 2. – P. 83–94. DOI: 10.1016/S0039-6028(01)01409-1
7. **Абгарян, К. К.** Применение оптимизационных методов для решения задач параметрической идентификации потенциалов

межатомного взаимодействия / К. К. Абгарян, М. А. Посыпкин // Ж. вычисл. матем. и матем. физ. – 2014. – Т. 54, № 12. – С. 1994–2001.

8. Абгарян, К. К. Математическое моделирование процессов формирования кластеров точечных дефектов на базе молекулярно-динамического подхода / К. К. Абгарян, О. В. Володина, С. И. Уваров // Известия вузов. Материалы электрон. техники. – 2015. – Т. 18, № 1. – С. 31–42. DOI: 10.17073/1609-3577-2015-1-37-42

9. Евтушенко Ю. Г. Параллельный поиск глобального экстремума функций многих переменных / Ю. Г. Евтушенко, В. У. Малкова, А. А. Станевичус // Ж. вычисл. матем. и матем. физ. – 2009. – Т. 49, № 2. – С. 255–269.

10. Tersoff, J. Empirical interatomic potential for silicon with improved elastic properties / J. Tersoff // Phys. Rev. B. – 1988. – V. 38, iss. 14. – P. 9902–9905. DOI: 10.1103/PhysRevB.38.9902

11. VASP. <http://cms.mpi.univie.ac.at/vasp/>

12. Евтушенко, Ю. Г. Оптимизация и быстрое автоматическое дифференцирование / Ю. Г. Евтушенко. – Препринт ВЦ РАН, 2013. – 144 с.

13. Pantelev, A. V. Optimization methods in examples and tasks / A. V. Pantelev, T. A. Letova – Moscow : High school, 2005. – 544 p.

14. Powell, D. Elasticity, lattice dynamics and parameterisation techniques for the Tersoff potential applied to elemental and type III–V semiconductors: Ph.D. thesis / D. Powell. – University of Sheffield, 2006.

15. Зализняк, В. Е. Основы вычислительной физики. Ч. 2. Введение в метод частиц / В. Е. Зализняк. – М.; Ижевск: НИЦ «Регулярная и хаотическая динамика»; Институт компьютерных исследований, 2006. – С. 26–45.

16. Кривцов, А. М. Метод частиц и его использование в механике деформируемого твердого тела / А. М. Кривцов, Н. В. Кривцова // Дальневосточный математический журнал ДВО РАН. – 2002. – Т. 3, № 2. – С. 254–276.

Работа выполнена за счет средств проекта Российского научного фонда № 14–11–00782 в ВЦ РАН ФИЦ ИУ РАН.

Статья поступила в редакцию 14 декабря 2015 г.

ISSN 1609–3577 Izvestiya vuzov. Materialy elektronnoi tekhniki = Materials of Electronic Technics. 2015, vol. 18, no. 4, pp. 267–272.

Molecular dynamic modeling of the initial stages of Si(111) surface nitridization in NH₃ atmosphere

Karine K. Abgaryan¹ — Cand. Sci. (Phys.–Math.), Head of the Department (kristal83@mail.ru); Yuri G. Evtushenko¹ — Director (evt@ccas.ru); Ilya V. Mutigullin¹ — Cand. Sci. (Phys.–Math.), Senior Researcher (mutigul@ccas.ru); Sergey I. Uvarov¹ — Junior Research (seruv25@gmail.com)

¹Dorodnicyn Computing Centre, Federal Research Center «Computer Science and Control» RAS, 40 Vavilov Str., Moscow 119333, Russia

Abstract. Molecular dynamic modeling of the deposition of a single ammonium molecule on the (111) surface of silicon has been carried out. We have used the process of parametric identification of interatomic interaction potentials for the atomic system being described. We have developed software for the molecular dynamic calculations that allows optimizing the geometry of the structures being considered and visualizing the results. To verify the results of molecular dynamic modeling we have carried out quantum mechanical calculations on a supercomputer. We have obtained the interatomic interaction potentials that allow deriving potentials suitable for further calculations during the modeling of the adsorption of an ammonium molecule on silicon surface. For example, they provide for a correct reproduction of the results of first-principle modeling of the interaction between an adsorbed nitrogen atom and silicon surface and the energy parameters of adsorption. Using the Tersoff potential with the parameters obtained as a result of parametric identification we modeled the position providing for the lowest total energy. This position is the most energetically favorable for an adsorbed atom.

Keywords: molecular dynamic, first principles calculations, silicon, ammonia, nitridization, molecular dynamics

References

1. Abgaryan K. K., Bazanov D. I., Mutigullin I. V. The simulation of the nitridation of the sapphire surface (001). *Mater. XXI Internat. Conf. «Interaction of ions with the surface» (ISI–2013)*. Yaroslavl, 2013, vol. 2, pp. 99–103.
2. Abgaryan K. K., Bazanov D. I., Mutigullin I. V. Investigation of atomic nitrogen adsorption on Al₂O₃(0001). *J. Surface Investigation: X-Ray, Synchrotron and Neutron Techniques*. 2013, no. 1, pp. 80–84. (In Russ.). DOI: 10.7868/S0207352813010022
3. Hohenberg P., Kohn W. Inhomogeneous electron gas. *Phys. Rev.* 1964, vol. 136, pp. B864. DOI: 10.1103/PhysRev.136.B864
4. Kohn W., Sham L. J. Self-consistent equations including exchange and correlation effects. *Phys. Rev.* 1965, vol. 140, pp. A1133–A1138. DOI: 10.1103/PhysRev.140.A1133
5. Mansurov V. G., Galitsyn Yu. G., Malines T. V., Zhuravlev K. S. Formation of the ordered phase (8x8) SiN and the amorphous phase Si₃N₄ on a surface (111) Si in a stream ammonia. *Tezisy dokladov XII Rossiiskoi konferentsii po fizike poluprovodnikov = Abstracts of the XII Russian Conference on Semiconductor Physics*. Moscow: Fizicheskii institut im. P. N. Lebedeva RAN, 2015. P. 456. (In Russ.)

6. Wang X.–S., Zhai G., Yang J.–S., Wang L., Hu Y., Li Z., Tang J. C., Fung K. K., Cue N. Nitridation of Si(111). *Surf. Sci.* 2001, vol. 494, no. 2, pp. 83–94. DOI: 10.1016/S0039-6028(01)01409-1

7. Abgaryan K. K., Posypkin M. A. Optimization methods as applied to parametric identification of interatomic potentials. *Computational Mathematics and Mathematical Physics*. 2014, vol. 54, no. 12, pp. 1994–2001. (In Russ.)

8. Abgaryan K. K., Volodina O. V., Uvarov S. I. Mathematical modeling of point defect formation in silicon based on molecular dynamic approach. *Izvestiya Vysshikh Uchebnykh Zavedenii. Materialy Elektronnoi Tekhniki = Materials of Electronics Engineering*. 2015, vol. 18, no. 1, pp. 37–42. (In Russ.). DOI: 10.17073/1609-3577-2015-1-37-42

9. Evtushenko Yu. G., Malkova V. U., Stanевичus A. A. Parallel global optimization of functions of several variables. *Computational Mathematics and Mathematical Physics*. 2009, vol. 49, no. 2, pp. 246–260. DOI: 10.1134/S0965542509020055

10. Tersoff J. Empirical interatomic potential for silicon with improved elastic properties. *Phys. Rev. B*. 1988, vol. 38, no. 14, pp. 9902–9905. DOI: 10.1103/PhysRevB.38.9902

11. VASP. <http://cms.mpi.univie.ac.at/vasp/>

12. Evtushenko Yu. G. *Optimizatsiya i bystroie avtomaticheskoe differentsirovanie* [Optimization and FAD–Methodology]. Preprint, Dorodnicyn Computing Centre of the Russian Academy of Sciences, 2013. 144 p. (In Russ.)

13. Pantelev A. V., Letova T. A. *Optimization methods in examples and tasks*. Moscow: High school, 2005. 544 p

14. Powell D. Elasticity, lattice dynamics and parameterisation techniques for the Tersoff potential applied to elemental and type III–V semiconductors: Ph.D. thesis. University of Sheffield, 2006.

15. Zaliznyak V. E. *Osnovy vychislitel'noi fiziki. Ch. 2. Vvedenie v metod chastits* [Fundamentals of Computational Physics. Pt. 2. Introduction to the particle method]. Moscow; Izhevsk: NITs «Regulyarnaya i khaoticheskaya dinamika»; Institut komp'yuternykh issledovaniy, 2006, pp. 26–45. (In Russ.)

16. Krivtsov A. M., Krivtsova N. V. Method of particles and its application to mechanics of solids. *Dal'nevostochnyi Matematicheskii Zhurnal DVO RAN*. 2002, vol. 3, no. 2, pp. 254–276. (In Russ.)

Acknowledgements. The work was carried out with financial support from the Russian Scientific Foundation, Project No. 14–11–00782, the Computer Center of the Russian Academy of Sciences and the Federal Research Center for Informatics and Management of the Russian Academy of Sciences.

Received December 14, 2015