

بررسی خواص الکترونی و مغناطیسی تک لایه ی Ca بر روی Si(001) بازآرایی شده با استفاده از محاسبات نظریه تابعی چگالی

نصراصفهانی، وجیهه؛ هاشمی فر، سیدجواد؛ عبدالحسینی سارسری، اسماعیل

دانشکده فیزیک دانشگاه صنعتی اصفهان، اصفهان

چکیده

در این پژوهش با استفاده از محاسبات ابتدا به ساکن، نخست به بررسی بازآرایی سطح Si(001) پرداخته و الگوی پایدار این سطح را تعیین می‌کنیم. نتایج نشان می‌دهد که الگوی $c(4 \times 2)$ در توافق با مشاهدات آزمایشگاهی، از لحاظ انرژی پایدارترین الگو است. سپس تک لایه ی کلسیم بر سطح پایدارترین الگو قرار گرفته و با در نظر گرفتن هشت پیکربندی مختلف تحت واهلش قرار می‌گیرد. هدف از این کار بررسی احتمال تشکیل لایه نازک مغناطیسی CaSi در سطح سیلیکن است. نتایج نهایی نشان می‌دهد که پیکربندی پایدار تک لایه Ca روی سطح سیلیکن غیرمغناطیسی می‌شود. همچنین مشاهده کردیم که تک لایه کلسیم باعث کاهش بازآرایی سطحی سیلیکن در جهت (001) می‌گردد.

Investigation of the electronic and magnetic properties of a Ca monolayer on reconstructed Si(001) surface by using density functional theory.

Nasr Isfahani, Vajihah; Hashemifar, Seyed Javad; Abdolhosseini Sarsari, Ismaeil

Department of Physics, Isfahan University of Technology, Isfahan

Abstract

In this research, ab initio computation are employed to investigate first, the reconstruction of Si(001) surface and determine the stable reconstruction pattern of this surface. The results show that the $c(4 \times 2)$ pattern, in agreement with experimental observations, is energetically the most stable pattern. Then a monolayer of calcium is put on the surface of the most stable pattern and the resulting thin film is relaxed by considering eight different configurations. The goal of this study is to consider feasibility of a magnetic CaSi thin film on Si(001). The final results show that the most stable configuration of Ca monolayer on reconstructed Si(001) surface is nonmagnetic. Moreover, we observed that the calcium monolayer decreases the surface reconstruction of silicon in the (001) direction.

PACS No.

آویزان خواهند شد و این پیوندهای آویزان از لحاظ انرژی فعال و ناپایدار هستند. با توجه به این که همارایی اتم‌های سیلیکن در ساختار بلندروی چهار است، به ازای هر اتم دو پیوند آویزان در سطح (001) وجود دارد. تحقیقات تجربی و نظری، الگوهای بازآرایی متفاوتی را به منظور اشباع این پیوندهای آویزان پیشنهاد داده‌اند. با توجه به این که بازآرایی سطحی در جهت کمینه‌سازی انرژی صورت می‌گیرد، می‌توان الگوهای مختلف بازآرایی سطحی را بررسی و محاسبه کرد

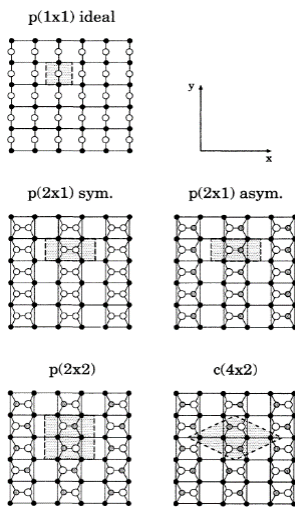
مقدمه

در دهه‌های گذشته علاقه‌ی زیادی به بررسی سطح Si(001) به دلیل کاربردهای مهم آن وجود داشته است [۱، ۲]. در این میان، در سال‌های اخیر تلاش‌های زیادی برای درک چگونگی رشد و جذب اتم‌های خارجی روی سطح صورت گرفته است. مشاهدات دقیق آزمایشگاهی نشان می‌دهد که سطح (001) سیلیکن نظم بلوری را حفظ نکرده و دچار بازآرایی سطحی می‌شود. در واقع اتم‌های سطحی به دلیل از دست دادن تعدادی از همسایگان، دارای پیوند

سیلیکن، منجر به رفتار مغناطیسی در سطح سیلیکن خواهد شد یا خیر. به این منظور ابتدا با اعمال بازآرایی‌های مختلف، بهترین بازآرایی از لحاظ انرژی را انتخاب نموده و سپس یک تک‌لایه از کلسیم با ساختار بلند روی بر روی آن پوشش داده‌ایم.

روش انجام محاسبات

محاسبات این پژوهش در چارچوب نظریه‌ی تابعی چگالی کن-شم (DFT) می‌باشد و از بسته‌ی محاسباتی کوانتوم اسپرسو استفاده شده است [۶]. این بسته‌ی محاسباتی، نرم‌افزاری چندمنظوره برای محاسبات ابتدا به ساکن در سیستم‌های تناوبی می‌باشد که بر اساس رهیافت توابع موج تخت (PW) و شبه‌پتانسیل

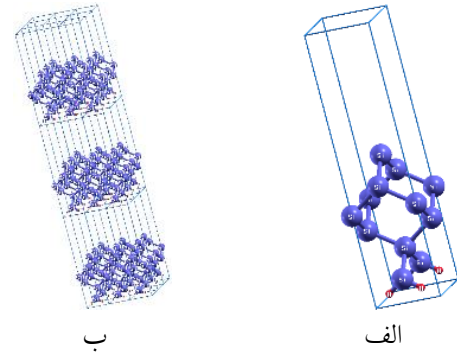


شکل ۲ نمای از بالا برای سطح بازآرایی نشده (ایده‌آل) و چهار بازآرایی پیشنهاد شده [۷].

(PP) استوار شده است. این نرم‌افزار برای کار در محیط لینوکس نوشته شده است و قابلیت محاسبه‌ی اکثر تقریب‌های انرژی تبادل-همبستگی مانند LDA, GGA, LSDA و LDA+U را دارد. در اینجا از شبه‌پتانسیل فوق نرم و تقریب تعمیم‌شیب تعمیم یافته (PBE) استفاده شده است.

نتایج و محاسبات

ابتدا به بهینه‌سازی تعداد نقاط k و انرژی قطع لازم برای انجام محاسبات پرداختیم که مقادیر بهینه 4 و 30Ry برای این دو پارامتر بدست آمد. سپس با استفاده از این مقادیر ثابت شبکه تعادلی بلور

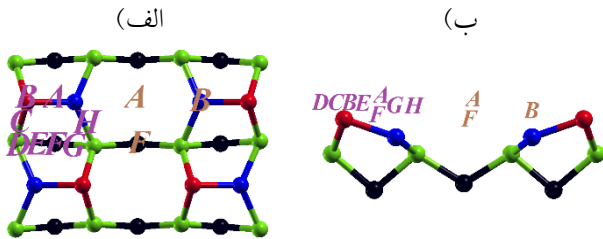


شکل ۱ الف) ابریاخته‌ی مربوط به ساختار سطح و ب) تکرار ابریاخته در فضای سه‌بعدی.

و با مقایسه‌ی انرژی‌های حاصل، بهترین و محتمل‌ترین الگو را از لحاظ انرژی انتخاب نمود.

اخیرا با استناد به محاسبات ابتدا به ساکن، ادعا شده است که بلور دوتایی $CaSi$ در ساختار بلندروی یک نیم‌فلز فرومغناطیس است [۳]. نیم‌فلزات فرومغناطیس دارای قطبش اسپینی کامل (۱۰۰ درصد) در سطح فرمی هستند و لذا برای کاربرد در فناوری اسپینترونیک بسیار مورد علاقه هستند. علاوه بر این، مشاهده مغناطش در بلور $CaSi$ که فاقد الکترون d می‌باشد، شایان توجه است، زیرا مغناطش مرسوم در سیستم‌هایی دارای پوسته‌های الکترونی نیمه پر d یا f اتفاق می‌افتد. اخیرا مشاهده رفتار مغناطیسی در ترکیباتی که فاقد اربیتال d یا f هستند، درهای جدیدی را به روی علوم و فناوری مغناطیس گشوده است [۴]. در برخی از این ترکیبات، نقایص شبکه، تهی جاها یا اتم‌های خارجی منشاء رفتار مغناطیسی هستند. از این دسته می‌توان گرافین را نام برد که به صورت ایده‌آل مغناطیسی نیست، اما دارای نانوساختارهای مغناطیسی است [۵]. دسته‌ی دیگر، نظیر بلور $CaSi$ ، سیستم‌هایی هستند که ممان مغناطیسی آن‌ها ناشی از خود اتم‌های سیستم می‌باشد و از این دسته می‌توان ترکیبات دوتایی گروه $IV/V - III/A$ را نام برد که در برخی ساختارهای شبه‌پایدار، فرومغناطیس هستند. مغناطش این مواد ناشی از پرشدگی ناقص اربیتال p آنیون‌هاست و این مواد معمولا فرومغناطیس نیم‌فلز هستند. نیم‌فلزات فرومغناطیس به دلیل داشتن قطبش اسپینی کامل منابع ایده‌آلی برای جریان قطبیده هستند و لذا پتانسیل بالایی برای کاربرد در فناوری درحال ظهور اسپینترونیک دارند. در پژوهش حاضر، تحقیق شده است که آیا پوشش یک تک‌لایه از کلسیم بر روی سطح

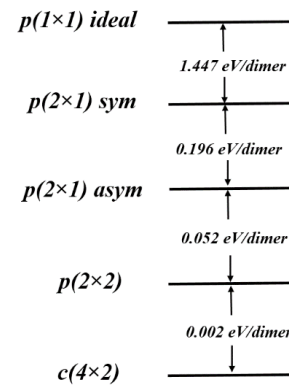
وجود الگوی $p(2 \times 2)$ در آزمایش‌های تجربی به ندرت مشاهده شده است [۹, ۱۰]. به‌رحال با توجه به نتایج فوق الگوی $c(4 \times 2)$ پایدارترین الگو از لحاظ انرژی به نظر می‌رسد. حال یک تک‌لایه از کلسیم با ساختار بلندروی بر الگوی $c(4 \times 2)$ قرار می‌دهیم. شایان ذکر است که این قرارگیری در مکان‌های مختلف قابل انجام است. ما ۸ موقعیت مختلف را برای قرارگیری اتم کلسیم روی سطح سیلیکن در نظر گرفتیم که در شکل ۴ نشان داده شده است. در این شکل، حروف بنفش نمایش‌گر موقعیت‌های مختلف قرارگیری هستند و حروف تکراری قهوه‌ای، مکان اتم کلسیم بعدی را طبق ساختار بلندروی نشان می‌دهد. انرژی کمینه بدست آمده برای موقعیت‌های مختلف، پس از انجام دقیق واهلش ساختاری، در جدول ۱ ارایه شده است.



شکل ۴. طرح‌واره‌ی موقعیت‌های مختلف قرارگیری کلسیم بر $Si(001)$ بازآرایی‌شده، (الف) نمای بالا (ب) نمای روبرو. گوی قرمز اتم بالایی دایمر، گوی آبی اتم پایینی دایمر، گوی سبز اتم‌های اولین زیرلایه و گوی مشکی اتم‌های دومین زیرلایه را نشان می‌دهند.

مشاهده می‌شود که در موقعیت H پایدارترین ساختار به‌وجود آمده است. نتایج بدست آمده حاکی از غیر مغناطیسی لایه نازک شکل گرفته در سطح سیلیکن است. همان‌طور که در شکل ۵ مشاهده می‌شود، بلور $CaSi$ ، براساس محاسبات، فرومغناطیس نزدیک به نیم-فلز بدست آمده است و بیشترین مغناطش آن ناشی از اتم‌های سیلیکن می‌باشد. همچنین چگالی حالات اتم‌های سیلیکن زیرلایه و کلسیم قرارگرفته بر سطح بر هم منطبق بوده، که نشان‌دهنده‌ی اثر یکسان این اتم‌ها می‌باشد. همچنین شاهد پهن‌شدگی چگالی حالات مربوط به سیلیکن در قرارگیری تک‌لایه‌ی کلسیم بر سطح سیلیکن هستیم. بنابراین انتظار ما برای تشکیل یک لایه نازک نیم‌فلز $CaSi$ در سطح برآورده نشد. این سیستم فلز می‌باشد و اگر به ساختار نهایی آن (شکل ۶) دقت کنیم، مشاهده می‌کنیم که الگوی بازآرایی $c(4 \times 2)$ ، پس از واکنش با تک‌لایه کلسیم به $p(2 \times 1) \text{ asym}$ بسیار

سیلیکن مقدار 10.34 bohr محاسبه گردید. برای بررسی خواص لایه نازک و سطح توسط کدهای محاسباتی که در آن‌ها از شرط مرزی دوره‌ای استفاده می‌شود، از روش ابریخته استفاده می‌شود. در این روش با در نظر گرفتن یک بُره با ضخامت مناسب و سپس با در نظر گرفتن خلأ به اندازه‌ی کافی بزرگ در امتداد جهت عمود بر سطح مورد نظر، ابریخته را تولید می‌کنند. در این پژوهش از این روش برای محاسبه سطح سیلیکن در راستای $(0 \cdot 0 \cdot 1)$ ، استفاده شده است، به این صورت که در راستای $(0 \cdot 0 \cdot 1)$ ، تقارن انتقالی در راستای محور Z شکسته می‌شود و لذا بهتر است از یاخته‌ی کوچک‌تر تراگوناال به جای یاخته‌ی متداول FCC برای ساختن ابریخته استفاده کرد. در این پژوهش پیوندهای آویزان پایین‌ترین لایه توسط اتم‌های هیدروژن اشباع شدند. همچنین سه لایه‌ی پایینی ثابت شده و به آن‌ها اجازه‌ی واهلش داده نشد. با انجام محاسبات مقدارهای بهینه‌ی مربوط به ضخامت خلأ و بُره، به ترتیب برابر با 15 bohr و ۸ لایه بدست آمد.



شکل ۳ اختلاف انرژی بین الگوهای متفاوت بازآرایی با ۸ لایه‌ی اتمی.

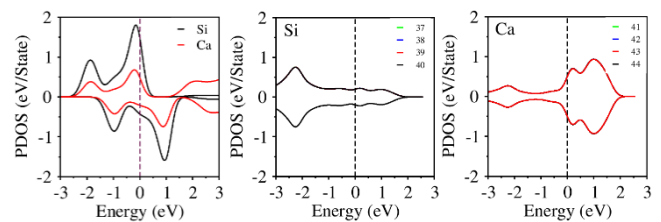
حال به بررسی بازآرایی سطح $Si(001)$ می‌پردازیم. الگوهای متفاوتی که برای بازآرایی این سطح پیشنهاد شده، در شکل ۲ نشان داده شده است. با استفاده از یک ابریخته‌ی ۸ لایه‌ای، الگوهای مختلف را بررسی کردیم و ساختارهای مربوطه را با دقت بالایی واهلش دادیم. پس از واهلش انرژی کمینه بدست آمده برای این الگوها در شکل ۳ ارایه شده است. لازم به ذکر است که برای دستیابی به این نتایج، دقت $1 \mu Ry$ در نظر گرفته شده است.

این نتایج هم‌خوانی خوبی با نتایج دیگران [۷, ۸] دارد. اختلاف انرژی بین الگوهای $p(2 \times 2)$ و $c(4 \times 2)$ بسیار ناچیز است، با این

رسیدیم که این ترکیب دارای مغناطش صفر می‌باشد و رفتار فرومغناطیسی در سطح مشاهده نکردیم. همچنین دریافتیم که الگوی بازآرایی پس از جذب لایه‌ی کلسیم تغییر کرده و به الگوی $p(2 \times 1)$ asym با زاویه انحراف بسیار کم، نسبت به $p(2 \times 1)$ sym تبدیل شده است.

مرجع‌ها

- [۱] J. Griffirh and G. Kochanski, "The atomic structure of vicinal Si (001) and Ge (001)," *Critical Reviews in Solid State and Material Sciences*, vol. 16, pp. 255-289, 1990.
- [۲] R. Uhrberg and G. Hansson, "Electronic structure of silicon surfaces: Clean and with ordered overlayers," *Critical Reviews in Solid State and Material Sciences*, vol. 17, pp. 133-185, 1991.
- [۳] G. Gao, K. Yao, Z. Liu, J. Jiang, L. Yu, and Y. Shi, "Search for new half-metallic ferromagnets in zinc blende CaSi and CaGe by first-principles calculations," *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 19, p. 315222, 2007.
- [۴] I. Elfimov, S. Yunoki, and G. Sawatzky, "Possible path to a new class of ferromagnetic and half-metallic ferromagnetic materials," *Physical review letters*, vol. 89, p. ۲۱۶۴۰۳, ۲۰۰۲.
- [۵] Z. Wang and F. Liu, "Giant magnetoresistance in zigzag graphene nanoribbon," *Applied Physics Letters*, vol. 99, p. 042110, 2011.
- [۶] P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, et al., "QUANTUM ESPRESSO: a modular and open-source software project for quantum simulations of materials," *Journal of physics: Condensed matter*, vol. 21, p. 395502, 2009.
- [۷] A. Ramstad, G. Brocks, and P. Kelly, "Theoretical study of the Si (100) surface reconstruction," *Physical Review B*, vol. 51, p. 14504, 1995.
- [۸] C.-S. Guo, K. Hermann, and Y. Zhao, "Dynamics and Energetics of Reconstruction at the Si (100) Surface," *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 118, pp. 25614-25619, 2014.
- [۹] K. Hata, S. Yoshida, and H. Shigekawa, " $p(2 \times 2)$ Phase of buckled dimers of Si (100) observed on n-type substrates below 40 K by scanning tunneling microscopy," *Physical review letters*, vol. 89, p. 286104, 2002.
- [۱۰] L. Perdigo, D. Deresmes, B. Grandidier, M. Dubois, C. Delerue, G. Allan, et al., "Semiconducting surface reconstructions of p-type Si (100) substrates at 5 K," *Physical review letters*, vol. 92, p. 216101, 2004.

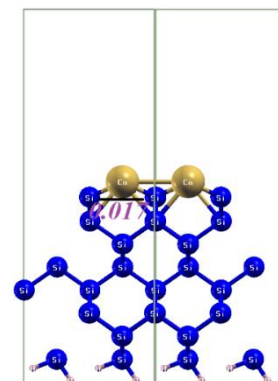


شکل ۵. نمودار چگالی حالات جزئی. از چپ به راست مربوط به بلور CaSi. اتم‌های سیلیکن زیر لایه و اتم‌های کلسیم قرارگرفته روی سطح.

جزئی با زاویه 0.017° تبدیل شده است. حتی شاید بتوان این الگوی را نزدیک‌تر به $p(1 \times 1)$ در نظر گرفت.

جدول ۱. انرژی کمینه موقعیت‌های مختلف قرارگیری کلسیم روی Si(001) بازآرایی شده نسبت به انرژی پایدارترین موقعیت بر حسب mRyd

A	B	C	D	E	F	G	H
۱۶۹	۱۶۴	< ۱	۱۵۲	۳	۵	۳	۰



شکل ۶. ساختار نهایی سطح Si(001) بازآرایی شده پس از جذب تک‌لایه Ca

بحث و نتیجه‌گیری

در این پژوهش با استفاده از محاسبات ساختار الکترونی در رهیافت شبه‌پتانسیل، بازآرایی سطحی سیلیکن در جهت بلوری (۰۰۱) بررسی شده و سپس اثر تک‌لایه‌ی کلسیم بر پایدارترین الگوی بازآرایی محاسبه شده است. پس از بررسی و محاسبه انرژی کمینه‌ی الگوهای محتمل، به این نتیجه رسیدیم که الگوی $c(4 \times 2)$ از لحاظ انرژی پایدارترین الگو است. سپس تک‌لایه‌ای از کلسیم با ساختار بلند روی بر روی الگوی پایدار قرار گرفت. ابتدا با بررسی موقعیت‌های مختلف، بهترین موقعیت برای قرارگیری لایه‌ی کلسیم روی سطح سیلیکن تعیین شد. پس از انجام محاسبات به این نتیجه