

# Об одном алгоритме оптимизации расчетов методом Монте-Карло при моделировании роста кристаллов<sup>1</sup>

Ю. С. Нагорнов, к. ф.-м. н.<sup>2</sup>

Тольяттинский государственный университет

nagornovys@yandex.ru

---

Предложен метод Монте-Карло для моделирования роста кристалла в условиях, когда параметры физических величин могут в процессе моделирования существенно меняться, что на порядки увеличивает число событий. Для оптимизации расчетов предложен алгоритм, в котором предлагается провести группировку событий по различным критериям. В этом случае вероятность каждого события записывается как вектор, у которого первая координата собственно вероятность наступления события, а вторая и последующая координаты — это номера групп, к которым это событие отнесено. При инициализации определяются вероятности наступления групп событий, а при моделировании выбор конкретного события происходит последовательно — сначала выбор группы, потом выбор события внутри группы, причем группы могут быть вложены друг в друга. В конце алгоритма определяется факт, произойдет событие или нет. Алгоритм позволяет ускорять расчеты в 40 и более раз.

*Ключевые слова:* метод Монте-Карло, моделирование роста кристаллов, вектор вероятности для групп событий.

## 1. Алгоритм Монте-Карло для моделирования роста кристаллов

При исследовании роста кристалла метод Монте-Карло позволяет моделировать динамику движения атомов на поверхности. Для того чтобы моделирование было близко к реальному кристаллу число атомов должно быть существенно больше  $10^6$ . Первые попытки моделирования кристаллов были осуществлены в работах [1-3], где кристалл с кубической решеткой состоял из двумерного газа атомов. При этом учитывались процессы поверхностной диффузии, адсорбции и десорбции, вероятности которых рассчитывались через параметры энергетических барьеров:

$$v_{diff} \sim \exp\left(-\frac{E_{diff}}{kT}\right), \quad (1)$$

---

<sup>1</sup>Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ №11-01-00311-а

<sup>2</sup>©Ю. С. Нагорнов, 2013

$$v_{des} \sim \exp\left(-\frac{E_{des}}{kT}\right), \quad (2)$$

$$\alpha_{ads} \sim \exp\left(\frac{\mu}{kT}\right). \quad (3)$$

В формулах (1)–(3) введены следующие обозначения:

$v_{diff}$  — количество переходов атомов в соседние положения кристаллической решетки в единицу времени, характеризующие диффузионный процесс;

$v_{des}$  — количество атомов, десорбированных с поверхности кристалла в единицу времени, характеризующие процесс десорбции;

$\alpha_{ads}$  — количество атомов, адсорбированных на поверхность кристалла в единицу времени, характеризующие процесс адсорбции, а  $\mu$  — химический потенциал;

$kT$  — температурный потенциал, в единицах которого удобно задавать параметры энергетических барьеров и проводить расчеты;

$E_{diff}$  — энергия связи атома при расчете вероятности диффузионного процесса, которая определяется для каждого атома в соответствии с выражением:  $E_{diff} = -\epsilon_{diff} - n_1\epsilon_1 - n_2\epsilon_2$ , где  $\epsilon_{diff}$  — энергия барьера диффузии,  $n_1, \epsilon_1$  — количество соседей и энергия связи с ними соответственно для первой координационной сферы,  $n_2, \epsilon_2$  — тоже для второй координационной сферы;

$E_{des}$  — энергия связи атома при расчете вероятности десорбции, которая определяется для каждого атома в соответствии с выражением:  $E_{des} = -\epsilon_{des} - n_1\epsilon_1 - n_2\epsilon_2$ , где  $\epsilon_{des}$  — энергия барьера десорбции,  $n_1, \epsilon_1, n_2, \epsilon_2$  — как и в предыдущем случае, количество соседей и энергия связи для первой и второй координационных сфер.

Поскольку формулы (1)–(3) определяют вероятности процессов диффузии, адсорбции и десорбции, для моделирования динамики роста кристалла вводят дискретный отрезок времени, на котором происходит определенное количество данных процессов. Заданный отрезок времени или временной шаг моделирования  $\tau$ , вообще говоря, может быть как постоянным, так и изменяющимся в соответствии с величиной вероятности наиболее частого процесса. При этом вероятность того или иного процесса будет задавать отношение количеств элементарных актов соответствующих процессов за время  $\tau$  к общему количеству актов всевозможных процессов. Зная количество событий за выбранный отрезок времени, можно рассчитать шаг моделирования  $\tau$  так, чтобы за один шаг происходило не

более одного события или не происходило ни одного, так называемое пустое событие.

Для программной реализации вероятностных процессов вводят понятие темпа процесса — вероятность того, что за единичный промежуток времени произойдет данное событие, тогда число событий будет равно произведению темпов на время моделирования. В настоящей работе расчеты проводились по схеме Максима [4], когда события с одинаковыми типами процессов и, соответственно, с одинаковыми темпами процессов  $\rho_a$  выделяются в группу  $q_a = n_a \cdot \rho_a$ , при этом каждый тип процесса может быть реализован  $n_a$  событиями. Под понятием событий, реализуемых в моделируемой системе атомов, понимается прыжок атома (соответствующий процессу диффузии), десорбция частицы с поверхности кристалла и осаждение атома на его поверхность. При заданной конфигурации  $C$  полный темп  $Q(C)$  будет равен сумме всех темпов всевозможных событий или сумме темпов всех групп событий. Тогда относительная вероятность изменения конфигурации системы путем реализации события  $a$  равна  $\rho_a/Q(C)$ , при этом сумма относительных вероятностей всех событий равна 1. Таким образом, реализация метода Монте-Карло заключается в том, что в каждый момент времени рассчитывается темп каждого элементарного события в системе, определяется их относительная вероятность, в соответствии с которыми случайным образом выбирается выполняемое событие.

Для каждой конфигурации полный темп событий будет разный, поэтому и полный темп и число  $n_a$  событий пересчитываются на каждом шаге моделирования. Время моделирования, соответствующее процессам в реальном кристалле, определяется через вероятности или полный темп на каждом шаге моделирования:

$$\Delta t = \frac{1}{Q(C)} \quad (4)$$

При моделировании роста кристаллов и нанокристаллов на поверхности кристалла, не учитываются многие сопутствующие процессы, такие как:

- физическая адсорбция продуктов и молекул газа-носителя на поверхность,
- процесс химического разложения молекул на атомы, который происходит благодаря быстрому нагреванию на поверхности кристалла, разогретой до высоких температур,

— десорбция летучих продуктов после химического разложения.

Учет только движения адсорбированных атомов на поверхности и только по поверхности определяет принцип *solid-on-solid* или SOS. Согласно этому принципу считается, что под каждым атомом имеет другой атом, с которым существует химическая связь. Чтобы атому совершить переход, ему нужно разорвать химическую связь, перейти на соседнее вакантное место и создать уже там химическое соединение. Естественно, на такие передвижения способны только атомы поверхности, что в расчетах на изначально гладких поверхностях позволяет упростить массив хранения координат атомов, запоминая только высоты атомов.

С одной стороны моделирование по принципу SOS позволяет работать только с двумерным массивом данных, вместо трехмерного, с другой стороны влияние сопутствующих факторов должно быть минимальным. Следовательно, рост кристалла должен быть послойным и медленным, а поверхность должна быть абсолютно гладкой. При моделировании пористых сред, дефектных поверхностей, поверхностей с межзеренными границами, где происходит изменение кристаллической ориентации, такой подход является не состоятельным.

Принцип SOS позволял проводить моделирование осаждения атомов на *Si* и *GaAs* подложки [5,6], причем в работе [2] было введено понятие нулевых событий, выбор которых не приводил к изменению состояния системы, но их использование определялось необходимостью обеспечить термодинамическое равновесие и реализацию процессов с соответствующими вероятностями. Так на каждом шаге алгоритма равновероятно выбиралась ячейка на поверхности кристалла (рис.1A), затем для этой ячейки определялся тип процесса. Для разных атомов на поверхности сумма вероятностей меняется в зависимости от конфигурации окружения и количества возможных событий. Именно поэтому в каждой ячейке суммарная вероятность возможных событий различна. Чтобы компенсировать эту разницу в алгоритм были добавлены пустые события, которые выпадали в случае попадания в ячейку, вероятность изменения состояния которой крайне мала. Поскольку для атомов темпы диффузии могут варьироваться в пределах нескольких порядков, генерация пустых событий будет значительно превосходить другие типы событий, что приводит к существенному снижению скорости вычислений.

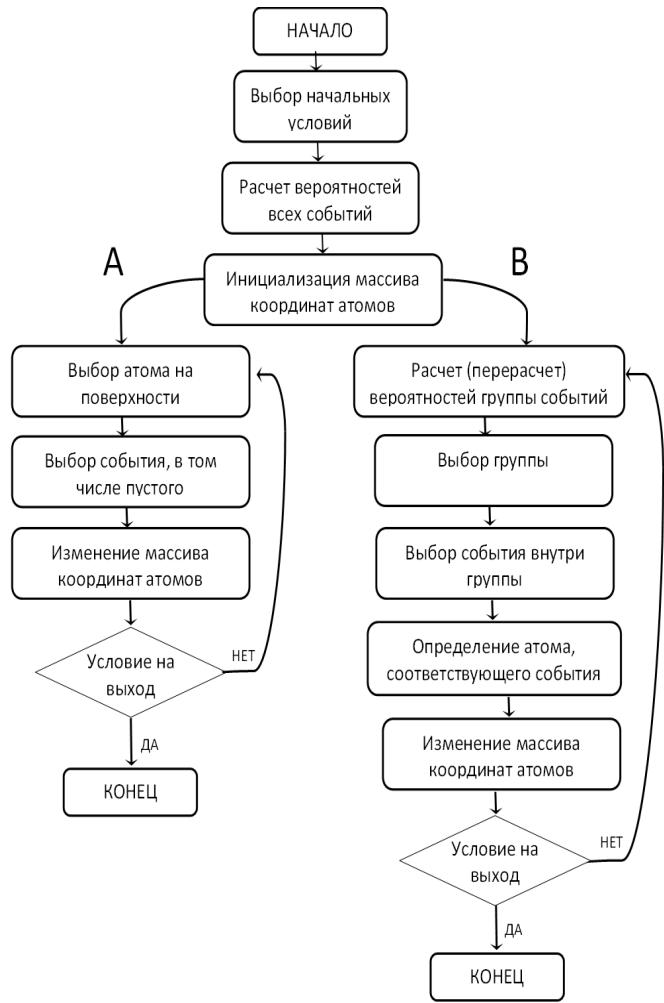


Рис. 1: Два алгоритма моделирования методом Монте-Карло: А – алгоритм с использованием нулевых событий по принципу *solid-on-solid* [2]; В – алгоритм Максима с использованием групп событий [4, 7].

Существенно увеличить скорость расчетов за счет принципиально нового способа учета элементарных событий в системе уда-

лось в работах [4,7]. Для этого все генерация случайных событий привязывается не к атомам, а к типам процессов (рис. 1В). Так сначала все атомы в зависимости от их окружения привязываются к группам событий, для которых фиксированы при заданной температуре вероятности событий. Затем вероятность событий суммируется, и получаем вероятность для каждой группы событий в текущей конфигурации системы. При разыгрывании случайного числа выбирается только группа событий, поскольку внутри группы все события равновероятны, окончательно генерируется случайное число и выбирается событие внутри группы, которое привязано к конкретному атому. Таким образом, здесь логика моделирования обратная по отношению к предыдущему алгоритму. После каждого события необходимо провести дополнительный пересчет вероятностей событий для атомов, изменивших свое местоположение и его соседей. В результате немного изменится вероятность групп событий и массив координат, который хранит информацию о привязке атомов к событиям. В этом алгоритме полностью отсутствуют пустые события, но на каждом шаге тратится время на пересчет вероятностей групп (рис. 1В).

Если количество событий не велико, например, для кремния порядка 50, метод Максима дает хорошие результаты. Так в работе [8] проводили моделирование молекулярно-лучевого эпитаксиального роста кремния на кремниевой подложке в диапазоне температур 500-1000К. В этом алгоритме нет ограничений по принципу SOS, т. е. в модели разрешено формирование сложных нависающих образований и вакансий внутри сплошного слоя кремния, что позволяет моделировать рост кристалла, независимо от скорости потока частиц на поверхность. Условием на выход в представленных алгоритмах (рис. 1) обычно являются либо количество шагов моделирования, либо количество осажденных атомов, которое пересчитывается в количество монослоев.

## 2. Алгоритм Монте-Карло при большом числе событий

В некоторых случаях полезно оценить число событий в моделируемой системе, в случае кремния это 1-4 соседей в первой координационной сфере и 1-12 – во второй. Применяя статистику, в общем виде получаем число всевозможных событий, равным  $4! \cdot 12! =$

$24 \cdot 4.79 \cdot 10^8$ , что является очень большим числом. На практике число типов событий, где каждый тип определяется своим значением вероятности, для кремния примерно несколько десятков или сотен, т. к. атомы в первой координационной сфере практически гарантируют наличие атомов во второй, а число событий определяется “естественным” расположением атомов. В работах [9,10] было проведено моделирование пористого кремния при наличии градиента температур. В этом случае число событий в системе возросло до  $2 \cdot 10^4$ , а расчет обычным способом Монте-Карло происходил чрезвычайно долго, т.к. число событий практически совпадало с числом групп, а временной шаг моделирования был слишком маленьким (рис. 1B).

Оптимизировать число событий нельзя, но формирование группы событий может быть оптимизировано. В работах [9,10] была проведена оптимизация группированием событий по значению вероятностей. В общем случае это может быть сделано как переход из одномерного пространства вероятностей к дву-, трех- или  $n$ -мерному пространству вероятностей, когда каждое событие и, соответственно, его вероятность задаются вектором, состоящим из двух и более чисел. При этом первое число вектора соответствует значению вероятности процесса, второе и последующие соответствуют номерам групп, по которым происходит разбиение событий. Выбор осуществляется последовательно – сначала выбор группы по одной координате вектора, потом по другой и т. д. до тех пор, пока не происходит выбор конкретного события с определенной вероятностью.

Очевидно, что для каждой группы при этом задается свое значение вероятности выбора группы, для чего происходит усреднение или суммирование вероятностей внутри группы. Соответственно, выгодно группировать вероятности по их значениям, так чтобы внутри группы значения не отличались более, чем на заданное наперед число, например, 20%.

В случае моделирования отжига пористого кремния вероятность диффузии атома определяется величиной  $\exp(E/kT)$ . Если при постоянной температуре количество групп событий диффузии равно числу дискретных энергий связи частицы, то при различных значениях  $T$ , например, при линейном распределении температуры в подложке толщиной 400 монослоев это число составляет 20 000. Выходом в этой ситуации явился комбинированный метод Максима с

методом, учитывающим нулевые события.

Опишем метод в общем случае. Пусть имеется  $n$  событий (где  $n$  достаточно велико) с вероятностями  $p_i$  ( $i = 1..n$ ), сгруппированными по какому-либо признаку. В работах [9,10] это было сделано по степени их убывания, и в этом случае в первую группу определяются все процессы с вероятностями:

$$p_k \in (c \cdot p_1; p_1], \quad c \in (0; 1) \quad (5)$$

где  $c$  — некоторая константа, в нашем случае равная 0.8. Пусть  $n_1$  количество событий в первой группе, то вероятность того, что произойдет событие из первой группы  $G_1$  можно оценить несколькими способами, например:

$$G_1 = n_1 \cdot p_1 \quad \text{или} \quad G_1 = n_1 \cdot \frac{p_1 \cdot (1 + c)}{2} \quad (6)$$

Вторая и последующая группы формируются аналогичным образом, т. е. выбирается не попавшая в группу вероятность события, затем определяется диапазон вероятностей группы и происходит запись событий в данную группу и так до тех пор пока все события не будут разобраны по группам. При этом алгоритм предусматривает достаточно точную оценку вероятностей групп.

В этом случае алгоритм определения конкретного события в процессе моделирования можно записать следующим образом:

- 1) В соответствии с рассчитанными вероятностями происходит выбор группы событий, определяем начальную вероятность группы  $p_G$ .
- 2) **Равновероятный выбор** возможного события внутри группы, соответственно определение вероятности данного события  $p_i$ .
- 3) Определение факта происходит событие или нет по случайному числу  $r$  из диапазона  $[0,1]$ . Реализация события происходит, если выполняется условие:

$$\frac{p_i}{p_G} \geq r. \quad (7)$$

Если условие не выполняется, то алгоритм повторяется, т.е. происходит нулевое событие.

Общее число групп  $N$  в нашем случае можно оценить из выражения, что каждая последующая вероятность будет в число с мень-

ше, в результате получаем геометрическую прогрессию, где минимальный  $p_{min}$  и максимальный  $p_{max}$  члены связаны выражением:

$$p_{min} = p_{max} \cdot c^N \quad (8)$$

Видно, что число групп является логарифмом отношения вероятностей, в нашем случае это отношение может достигать значения  $10^{30}$ , при этом число групп получается не более 310 ( $c = 0.8$ ), что существенно ниже классического метода Монте-Карло [10]. В этом случае временной шаг задается гораздо больше, поэтому алгоритм работает на порядки быстрее. Выигрыш в расчете по времени и исключении пустых событий можно оценить из рис. 2, на котором представлены вероятности событий, объединенные в группы по убыванию значений. Показано, что область пустых событий занимает основную площадь в диаграмме вероятностей процессов. Очевидно, что с ростом числа процессов эта область существенно увеличиваться, что приведет к существенному замедлению расчета. Для ситуации, представленной на рис. 2, вероятность пустых событий составляет 89.1%. Наоборот, при использовании предложенного метода практически исчезает вероятность нулевых событий, которая в любом случае не превышает величины 1-с, а для ситуации, показанной на рис. 2, составляет 1.8%. Т. е. в приведенном примере получено ускорение расчетов в 40 раз, хотя данный показатель зависит от реализуемой в данный момент конфигурации и соответствующего распределения вероятностей.

Можно также отметить, что при изменении параметра  $c$  от 0 до 1, предложенная схема переходит либо в алгоритм Максима (при  $c=1$ ) либо в классический метод (при  $c=0$ ). Действительно, при  $c=0$  все события составляют единственную группу и фактически основной шаг моделирования состоит в поиске конкретного события, т.е. реализуется классический метод Монте-Карло. При  $c=1$  каждая группа содержит только события с одинаковыми вероятностями или одно событие, что позволяет перейти в алгоритм по схеме Максима [10].

Данная схема предусматривает также возможность распараллеливания, причем обычно алгоритм распараллеливания предусматривает разбивку по геометрическим параметрам, например, по площади моделирования, когда границы сшиваются [11]. В нашем случае разбивку на параллельные расчеты целесообразно сделать по группам вероятностей, тогда для каждой группы можно выделить

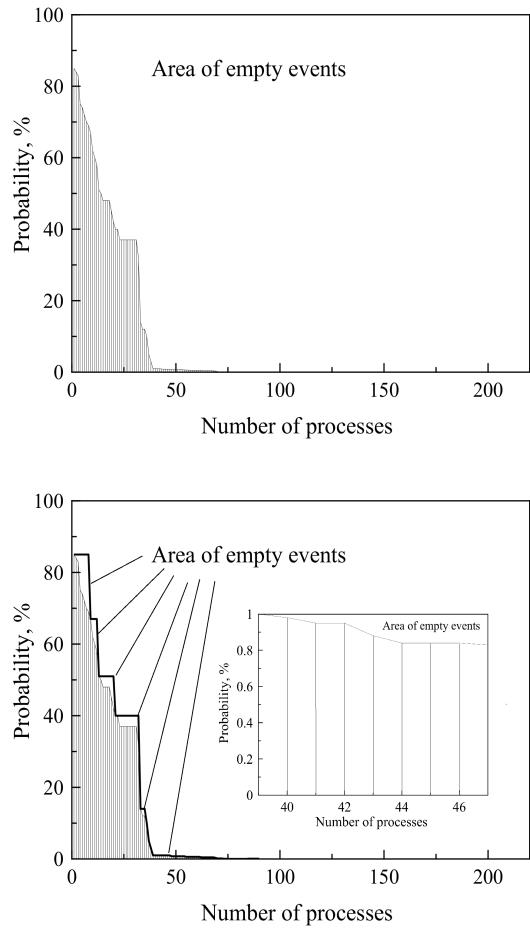


Рис. 2: Вверху – пример распределения относительной вероятности событий. Незаполненная площадь соответствует области пустых событий, которые будут выбираться при простом алгоритме Монте-Карло.  
Внизу – тот же график, что и вверху, но с выделением областей групп событий. В этом случае область пустых событий существенно уменьшается до области, представленной на вкладке.

вычислительный поток. Сборку вычислительных потоков целесообразно выполнить в виде цепочки событий, привязанных к координатам времени. В случае, если на каком либо временном этапе происходит изменение вероятностей, влияющих на события в другой группе, должен быть произведен перерасчет событий в данной группе, независимо от других групп, что несколько снизит эффективность расчета.

### 3. Заключение

Таким образом в работе предложен метод Монте-Карло для моделирования роста кристалла в условиях, когда параметры физических величин, такие как температура, энергии связи, локальное давление, сорт атомов и т. д., могут в процессе моделирования существенно меняться. В этом случае возникает существенный рост объемов вычислений в классическом методе Монте-Карло или его модификации – кинетическом Монте-Карло с применением схемы Максима.

Для оптимизации расчетов предложен алгоритм, в котором вероятность каждого события записывается как вектор. Первая координата вектора представляет собой вероятность наступления события, а вторая и последующая координаты – это номера групп, к которым это событие отнесено. При инициализации определяются вероятности наступления групп событий, а при розыгрыше конкретного события бросок кости происходит по числу мерности пространства вероятностей.

## Список литературы

- [1] Abraham F.F., White G.M. Computer Simulation of Vapor Deposition on Two-Dimensional Lattices // J. Appl. Phys. 1969. Vol. 41. No 4. P. 1841–1849.
- [2] Gilmer G.H., Bennema P. Simulation of crystal growth with surface diffusion // J. Appl. Phys. 1972. Vol. 43. No 4. P. 1347–1360.
- [3] Van Leeuwen C., Van Rosmalen R., Bennema P. Simulation of step motion on crystal surfaces // Surf. Sci. 1974. Vol. 44. P. 213–236.

- [4] *Levi A.C., Kotra M.* Theory and simulation of Crystal growth // J. Phys.: Condens. Matter 1997. Vol. 9. P. 299–344.
- [5] *Heyn Ch., Franke T., Anton R. et. al.* Correlation between island-formation kinetics, surface roughening and RHEED oscillation damping during GaAs homoepitaxy // Phys. Rev. B. 1997-II. Vol. 56. No 20. P. 13483–13489.
- [6] *McCoy J. M., Maksym P. A.* Monte Carlo simulation of III-V MBE growth: incorporating of electron-counting constraints // Semicond. Sci. Technol. 1991. Vol. 6. P. 141–144.
- [7] *Maksym P. A.* Monte Carlo simulation of III-V MBE growth // Semicond. Sci. Technol. 1998. No 3. P. 594–599.
- [8] *Kersulis S., Mitin V.* Molecular beam epitaxial growth of Si (001): Monte Carlo study // Semicond. Sci. Technol. 1995. Vol. 10. P. 653–659.
- [9] *Костишко Б.М., Золотов А.В., Нагорнов Ю.С.* Моделирование деградации рельефа нанопористого кремния в процессе отжига в неоднородном температурном поле // Физика и техника полупроводников. 2009. Т. 43. № 3. С. 372–375.
- [10] *Золотов А.В.* Моделирование процессов термического отжига и высокотемпературной карбонизации пористого кремния. Диссертация на соискание степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.10 – физика полупроводников. Ульяновск. УлГУ. 2007г. 139 с.
- [11] *Боргардт А.А., Нагорнов Ю.С.* Многопоточный алгоритм Монте-Карло моделирования роста нанокристаллов // Вектор науки ТГУ. 2012. № 4(22). С. 32-36.