二维硅（硅烯）力场的可迁移性

Marcin Maździarz*

地址：计算科学系，波兰科学院基础技术研究所，Pawińskiego 5B，02-106 华沙，波兰

电子邮箱：Marcin Maździarz - mmazdz@ippt.pan.pl

* 通讯作者

摘要

研究考察了各种原子间势再现硅烯（二维硅）多晶型性质的能力。利用密度泛函理论（DFT）和分子静力学（MS）计算，结合Tersoff、修正嵌入原子法、Stillinger-Weber、EDIP、ReaxFF、COMB以及基于机器学习的（ML-IAP）原子间势，获得了平面型（FS）、低翘曲型（LBS）、三角双哑铃型（TDS）、蜂窝哑铃相（HDS）和大型蜂窝双哑铃型（LHDS）单层硅（硅烯）相的结构和力学性质。报告并讨论了所得结果的定量系统比较。

关键词

二维材　料；硅烯；原子间势；力场；密度泛函理论；力学性质

1 引言

由于单质硅对现代全球经济（尤其是电子产业）至关重要，我们生活在“硅时代”。硅是研究最充分的材料之一，其生产质量令人印象深刻。然而，这说的是块体硅。人们对石墨烯的兴趣也引发了对其他非碳二维材料的关注 [1,2]。其中一种材料正是称为硅烯的二维硅 [3,4]。使用第一性原理方法，借助当前的计算

资源，我们可以对多达数百个原子的结构进行建模。对于更大的系统，则需要采用近似方法，例如分子动力学或分子静力学。对于这些方法，所用原子间势（IAP）的质量至关重要。由于硅的重要性以及其复杂性，人们已为其提出了数十种势。在广为人知的 NIST 原子间势数据库中，硅有 27 种势（没有其他元素拥有更多势），最早的一种发布于 1985年，最新的一种来自 2020 [5]。文献中至少报道了五种二维硅多晶型，即平面型（FS）、低翘曲型（LBS）[6], 三角双哑铃型（TDS）、蜂窝哑铃相（HDS）和大型蜂窝双哑铃型（LHDS）[7]。它们的动力学稳定性仍存疑，例如，对于平面相，选择合适的衬底或许可以消除负的 ZO 声子模，见[3,8]。人们对三维硅原子间势再现二维硅性质的能力研究甚少。有几篇论文评估了三维硅原子间势的质量，参见例如 [9-11]，但尚未涉及硅烯。本研究旨在首先使用第一性原理方法确定二维硅的结构和力学性质，然后测试不同原子间势再现这些性质的能力。

2 方法

分析有关单层（SL）硅所有相的现有文献后发现，无法以统一的方式获得所有结构、力学和声子数据。实验数据实际上仅限于生长在某些基底上的硅烯；迄今尚未发现纯净的自由支撑硅烯单层薄片[4,12], ，因此我们必须采用从头算计算。不幸的是，从头算计算（最常见的是密度泛函理论）在计算方法上也存在差异，例如采用不同的基函数、不同的赝势或交换-相关（XC）泛函；而内聚能和弹性常数等参数也难以获取。因此，本文采用下文所述的单一、一致的第一性原理方法，确定结构和力学数据，即晶格参数、平均内聚能、平均键长、平均高度、二维弹性常数以及声子数据

第2.1节。这些数据随后被用作参考数据，并标记为ValueDFT。然后，如第2.2节所述，使用第2.2.1小节中分析的分子势确定相同的数据，并将其标记为Valuepotential。基于这两组数据，我们可以直接定义平均绝对百分比误差（MAPE）：

$$\text{MAPE} = \frac{100\%}{n} \sum_{t=1}^{n} \frac{\text{Value}^{\text{DFT}} - \text{Value}^{\text{potential}}}{\text{Value}^{\text{DFT}}}, \quad (1)$$

以便我们量化所考察的势。

对于二维材料，方向相关的二维杨氏模量

$$E^{2D}_{[10]} = \frac{C_{11}C_{22} - C_{12}^2}{C_{22}} \quad \text{and} \quad E^{2D}_{[01]} = \frac{C_{11}C_{22} - C_{12}^2}{C_{11}}, \quad (2)$$

二维泊松比

$$\nu^{2D}_{[10]} = \frac{C_{12}}{C_{22}} \quad \text{and} \quad \nu^{2D}_{[01]} = \frac{C_{12}}{C_{11}}, \quad (3)$$

以及二维剪切模量

$$G^{2D} = C_{33}, \quad (4)$$

通常用来替代弹性常数 Cij。由于六方晶格具有对称性，这些参数可简化为一个二维杨氏模量 E 和一个二维泊松比，见 [13]。

2.1 从头算 *B* 计 *NITIO* 算

这里采用的从头计算方法与 [14]，中所用方法十分相似，即使用 [15,16], ABINIT 平面波近似程序 [17,18], 局域密度近似（LDA）[19,20] 作为交换-相关（XC）泛函，并采用优化范数守恒范德比尔特赝势 [21] （ONCVPP）。根据赝势和高斯展宽方案，DFT 计算中使用的硅截断能和电子组态为

采用 *tsmear*（Ha）=0.02。生成 K-PoinTs 网格时，*kptrlen* 设为 43.0。由于分析的是二维结构，沿 z-方向施加了 20 Å 的真空层。所分析的五种结构的初始数据根据 [6] 和 [7] 推导得出。随后对这些结构进行了仔细弛豫，并对晶胞几何和原子坐标进行完全优化 [14]。平均内聚能 Ec（eV/原子）通过计算先前弛豫结构的总能量与置于足够大的立方盒中的各个原子总能量之差得出。所有先前优化结构在理论基态下的 T=0 K 弹性常数 Cij，均采用密度泛函微扰理论（DFPT）中的应变度量张量表述计算 [22]。通过计算所谓的开尔文模量 [23-25]，验证所分析结构的力学稳定性。声子计算采用了 ABINIT 中实现的密度泛函微扰理论 [17,18] 。随后利用所分析结构沿 Γ[0,0,0]- M[1/2,0,0]-K[1/3,1/3,0]-Γ[0,0,0] [26] 路径的声子色散曲线，识别其动力学稳定性 [27], ，作为对力学稳定性的补充。

2.2 分子计算

为进行分子计算，采用分子静力学（MS）方法，T=0 K，[28-30]借助大规模原子/分子大规模并行模拟器（LAMMPS）完成，并通过开放可视化工具（OVITO）进行分析。对于密度泛函理论计算，首先使用共轭梯度（CG）算法对结构进行了完全预–弛豫，然后采用应力–应变方法计算其弹性常数 Cij，最大应变幅值设为 10^{-6} [30,31]。在 z方向上，设置了 20 Å 的真空层。

为评估所分析原子间势的性能，采用了一系列分子动力学（MD）模拟（200 个原子和 10000 个时间步，NVT 系综）以及 LAMMPS内置的时间步/秒函数。随后，相对于运行时间最长的模拟对结果进行了归一化处理。

2.2.1 原子间势

以下所列势函数的参数化数据来自

NIST 原子间势数据库和/或 LAMMPS 代码源。

1. Tersoff**1988** [33]：原始的 Tersoff 硅势（请务必注意，本文提出的是一种势函数形式，而非针对硅的特定参数化方案）

2. Tersoff**2007** [34]：针对金刚石结构硅的弹性常数拟合的 Tersoff 势 3

. Tersoff**2017** [35]：较新且优化得更好的硅 Tersoff 势

4. MEAM**2007** [36]：一种基于修正嵌入原子法（MEAM）形式体系的硅半经验原子间势

5. MEAM**2011** [37]：基于样条函数的修正嵌入原子法（MEAM）势，针对硅间隙原子拟合

6. SW**1985** [38]：针对硅固态和液态拟合的 Stillinger–Weber（Stillinger–Weber势）

7. SW**2014** [39]：针对单层硅片声子色散曲线拟合的 Stillinger–Weber（SW）势

8. EDIP [40]：针对硅的各种体相和缺陷结构拟合的环境依赖原子间势（EDIP）

9. ReaxFF [41]：针对涉及 Si/Ge/H 键合环境的 DFT 数据训练集拟合的反应力场（ReaxFF）

10. COMB [42]：针对纯硅和二氧化硅的五种多晶型拟合的电荷优化多体（COMB）势

11. SNAP [43]：基于机器学习的谱邻域分析势（SNAP）线性变体（ML-IAP），针对通过 DFT 计算获得的基态硅、应变结构和薄板结构的总能量与原子间作用力进行拟合

12. qSNAP [43]：基于机器学习的谱邻域分析势（qSNAP）二次变体（ML-IAP），针对通过 DFT 计算获得的基态硅、应变结构和薄板结构的总能量与原子间作用力进行拟合

13. SO(3) [44]：SO(3) 平滑功率谱势的基于机器学习（ML-IAP）变体，该势依据密度泛函理论模拟得到的晶体硅结构基态、应变结构、薄板、空位及液态构型进行拟合

14. ACE [45]：原子簇展开势（ACE）的基于机器学习（ML-IAP）变体，该势依据密度泛函理论计算确定的三维硅广泛性质进行拟合

3 结果与讨论

3.1 结构和力学性质

五种硅烯多晶型的基本晶胞，即平面相（FS）：（hP2，P6/mmm，No.191）、低翘曲型（LBS）：（hP2，P-3m1，No.164）、三角双哑铃型（TDS）：（hP7，P-62m，No.189）、蜂窝双哑铃型（HDS）：（hP8，P6/mmm，No.191）和大型蜂窝双哑铃型（LHDS）：（hP10，P6/mmm，No.191），如图1所示。此外，这些结构的晶体学数据存储在补充信息中的晶体学信息文件（CIF）里。

第一性原理计算的结果表明，所有硅烯相都具有六方对称性。结构的对称性决定了其物理性质的对称性（Neumann定理和居里定律）[46,47]。对于二维线性超弹性材料，共有四种对称类别[24]，而六方对称性意味着刚度张量具有各向同性，即仅有两个不同的弹性常数，并且它们满足沃伊特记号下的条件：$C_{11} = C22$，$C_{33} = (C_{11} - C12)/2$。

通过密度泛函理论计算确定的五种所分析硅烯多晶型的结构与力学特征，即晶格参数、平均内聚能、平均键长、平均高度、二维弹性常数、二维杨氏模量、泊松比和二维开尔文模量

汇总于表1。由于本文分析的是自由悬空硅烯，而它尚未在实验中观测到，因此我们将计算结果与其他作者的结果进行比较。我们发现，晶格常数、平均键长、平均高度和内聚能在密度泛函理论的精度范围内与其他计算结果一致。文献中仅有 LBS 相硅烯的力学性质数据，且仅限于二维杨氏模量和泊松比。这些量也与本文结果合理吻合。值得立即指出的是，所有硅烯相的所有计算所得二维开尔文模量均为正值，因此具有力学稳定性 [24]。图2展示了五种硅烯多晶型沿 Γ-M-K-Γ 路径的声子谱。对计算曲线的分析表明，TDS、LBS、HDS 和 LHDS 相不仅具有力学稳定性，也具有动力学稳定性，即所有声子模在任何位置的频率均为正值。FS 相具有力学稳定性，但可能存在动力学不稳定性，即光学 ZO 声子模的频率为负值。其他作者也观察到类似的 FS 相行为 [4,12],；然而，由于自然界中的硅烯并非自由悬空结构，选择合适的衬底可能会抑制面外振动模，从而制备出平面硅烯 [3]。因此，我们决定也将这一相纳入分子计算。

3.2 原子间势的性能

采用分子静力学和十四种不同的硅原子间势（Tersoff（×3）、MEAM（×2）、Stillinger-Weber（×2）、EDIP、ReaxFF、COMB 以及基于机器学习的（ML-IAP（×4））势，详见第2.2.1节）计算得到的平面硅烯（FS）相的十二项结构和力学性质，即晶格参数 a、b，平均内聚能、平均键长、平均高度 h、二维弹性常数 Cij 和二维开尔文模量，汇总于表 2；低翘曲硅烯（LBS）的结果见表 3，三角哑铃硅烯（TDS）的结果见表 4，蜂窝哑铃硅烯（HDS）的结果见表 5，大蜂窝哑铃硅烯（LHDS）的结果见表 6。随后，针对这五种硅烯相，分别将上述结果与密度泛函理论计算结果进行比较，并采用公式 1 中定义的平均绝对

百分比误差（MAPE）进行评估。让我们简要分析一下各相的结果：对于 FS 相，MEAM2011 势最准确，其 MAPE 最低，见表 2；对于 LBS 相，Tersoff2107 最准确，见表 3；对于 TDS 相，ReaxFF 最准确，见表 4；对于 HDS，相应地，ReaxFF 最准确，见表 5；对于 LHDS，ReaxFF 势再次表现最佳，见表 6。现在我们来做一个总结。分析的十四种势中，有七种，即 Tersoff2007、Tersoff2017、SW1985、SW2014、ReaxFF、SNAP 和 ACE，能够正确再现硅烯五种多晶型的结构性质，见表 3、5、6。两种势——ReaxFF 和 MEAM2011——在总平均绝对百分比误差（MAPE）方面表现最佳，见表 6。从计算成本来看，以分子动力学（MD）模拟中的归一化时间步/秒衡量相对性能，EDIP 和 Stillinger-Weber 势速度最快，比 MEAM 和 Tersoff 势快约 5 倍，比 ReaxFF 和 COMB 快约 100 倍，比 ML-IAP（ACE）势快至多 2000 倍，见表 6。还值得注意的是，根据所采用的方法，基于机器学习的（ML-IAP）原子间势在性能（MAPE）方面并不优于经典势，反而计算成本高出三个数量级，见表 6。

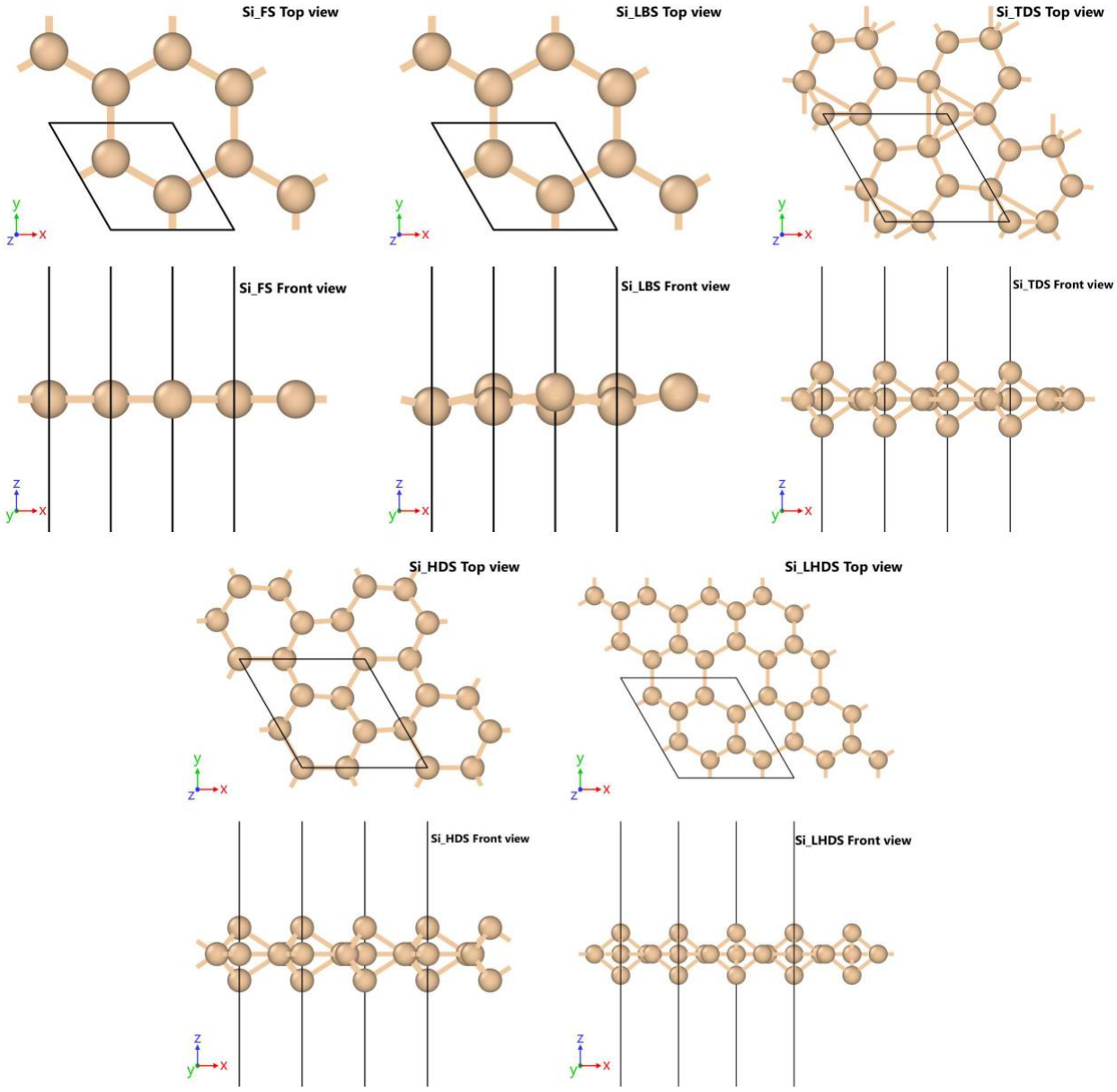
Si_FS Top view
Si_LBS Top view
Si_TDS Top view
Si_FS Front view
Si_LBS Front view
Si_TDS Front view
Si_HDS Top view
Si_LHDS Top view
Si_HDS Front view
Si_LHDS Front view

图1：硅烯的多晶型。

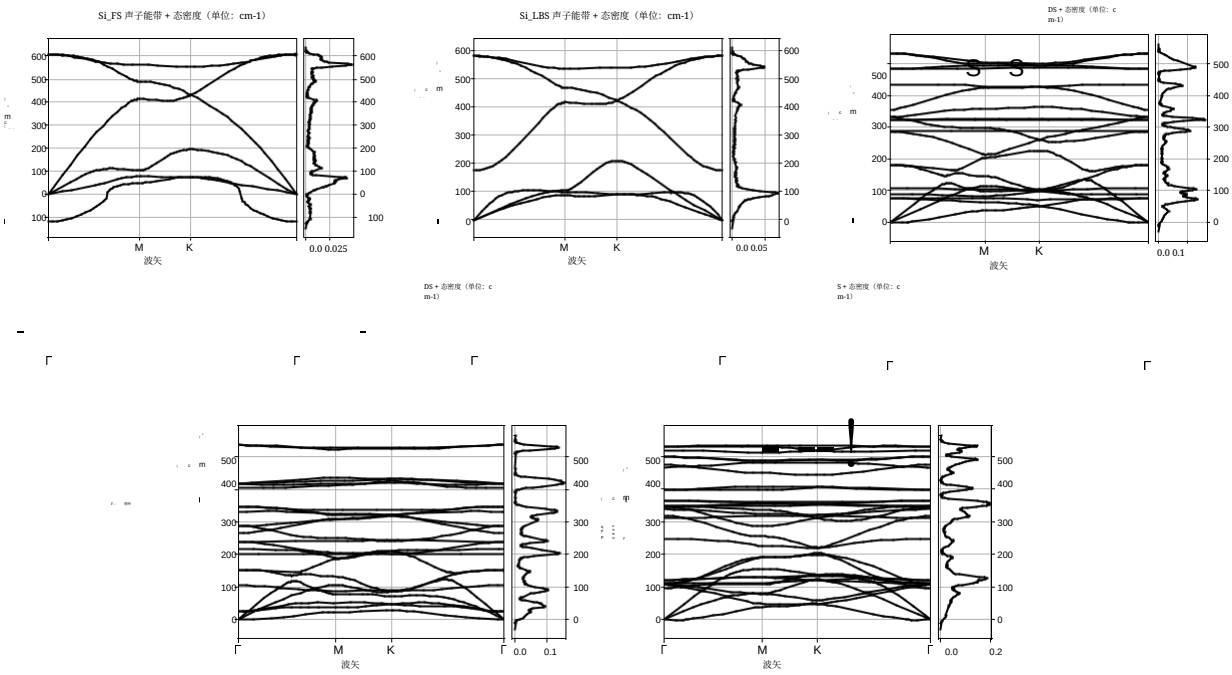

图 2：平面型（FS）、低翘曲型（LBS）、三角双哑铃型（TDS）、蜂窝哑铃相（HDS）和大型蜂窝双哑铃型（LHDS）单层硅（硅烯）相的声子色散和态密度（DOS）。高对称点：Γ[0,0,0]，M[1/2,0,0], K[1/3,1/3,0]。

表1：密度泛函理论（DFT）计算得到的平面型（FS）、低翘曲型（LBS）、三角双哑铃型（TDS）、蜂窝哑铃相（HDS）和大型蜂窝双哑铃型（LHDS）硅烯相的结构和力学性质：晶格参数 a,b（Å），平均内聚能

（eV/atom），平均键长（Å），平均高度 h （Å），二维弹性常数 Cij（N/m），二维杨氏模量 E（N/m）、泊松比和二维开尔文模量（N/m）。

同质异形体	FS		LBS		TDS	HDS	LHDS	
来源	本文参考文献		This work	参考文献	This work	参考文献。这	参考文献。这	参考文献
	This work					work	work	
a	3.855	3.90a	3.828	3.87a, 3.83b	6.434	6.52b 6.297	6.38b 7.334	7.425b
b	3.855	3.90a	3.828	3.87a, 3.83b	6.434	6.52b 6.297	6.38b 7.334	7.425b
–	4.562	4.764a	4.577	4.784a, 5.16b	4.679	4.679	4.769	
†	2.225		2.249	2.25b	2.331	2.399	2.357	
h	0.0	0.0[a]	0.421a	0.45a, 0.44b	2.734	2.635	2.683	
C_{11}	84.8		69.2		100.5	141.6	104.5	
C_{22}	84.8		69.2		100.5	141.6	104.5	
C_{12}	40.6		22.1		52.3	96.4	52.7	
C_{33}	22.1		23.6	61.8a	24.1	22.6	25.9	
E	65.4		62.2		73.3	76.0	77.9	
	0.48		0.32	0.31a	0.52	0.68	0.50	
	125.4		91.3		152.8	238.0	157.2	
	44.3		47.1		48.3	45.2	51.8	
	44.3		47.1		48.3	45.2	51.8	

[a] 参考文献 [48], b 参考文献 [7]。† 使用径向对分布函数计算的平均键长，截断 半径为*ff* = 3.0 Å，直方图分箱数为= 1000 [32]。

表 2：分子计算得到的平面硅烯（FS）的结构和力学性质：晶格参数 a、b（Å），平均内聚能（eV/atom），平均键长（Å），平均- 平均高度 h（Å），二维弹性常数 Cij（N/m），二维开尔文模量（N/m），平均绝对百分比误差（MAPE）（%）。

方法	DFT	Tersoff 1988	Tersoff 2007	Tersoff 修正嵌入原子法 2017	2007	MEAM 2011	SW 1985	SW 2014	EDIP	ReaxFF	COMB	ML-IAP SNAP	ML-IAP qSNAP	ML-IAP SO(3)	ML-IAP ACE
a	3.855	4.008	4.019	4.042	4.457	3.960	4.104	3.886	4.018	3.950	3.990	4.121	4.019	4.051	3.850
b	3.855	4.008	4.019	4.042	4.457	3.960	4.104	3.886	4.018	3.950	3.990	4.121	4.019	4.051	3.850
–	4.562	3.926	3.828	3.687	3.288	3.793	3.145	2.564	4.010	3.408	3.911	4.575	4.499	4.407	0.962
	2.225	2.315	2.321	2.333	2.573	2.288	2.369	2.243	2.321	2.282	2.306	2.381	2.321	2.340	2.222
h	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
C_{11}	84.8	54.6	55.2	47.7	57.3	84.0	58.8	57.3	87.4	74.7	79.7	41.5	24.7	41.0	88.9
C_{22}	84.8	54.6	55.2	47.7	57.3	84.0	58.8	57.3	87.4	74.7	79.7	41.5	24.7	41.0	88.9
C_{12}	40.6	49.5	47.4	52.8	29.7	40.8	34.4	33.0	9.2	36.8	23.9	16.2	17.6	23.9	44.8
C_{33}	22.1	2.6	3.9	-2.6	13.8	21.6	12.2	12.2	39.1	19.0	27.9	12.6	3.5	8.6	22.0
	125.4	104.0	102.6	100.5	87.0	124.8	93.2	90.3	96.6	111.5	103.6	57.6	42.3	64.9	133.7
	44.3	5.1	7.8	-5.1	27.6	43.3	24.4	24.4	78.2	37.9	55.8	25.3	7.0	17.1	44.1
	44.3	5.1	7.8	-5.1	27.6	43.3	24.4	24.4	78.2	37.9	55.8	25.3	7.0	17.1	44.1
MAPEFS		36.515	34.619	45.987	28.174	3.147	26.093	26.595	32.827	10.904	15.805	33.284	48.283	35.946	9.757

表 3：通过分子计算得到的低翘曲硅烯（LBS）的结构和力学性质：晶格参数 a、b（Å）、平均内聚能（eV/atom）、平均键长（Å）、平均高度 h （Å）、二维弹性常数 Cij（N/m）、二维开尔文模量（N/m）、平均绝对百分比误差（MAPE）（%）。

方法	DFT	Tersoff 1988	Tersoff 2007	Tersoff 修正嵌入原子法 2017	2007	MEAM 2011	SW 1985	SW 2014	EDIP	ReaxFF	COMB	ML-IAP SNAP	ML-IAP qSNAP	ML-IAP SO(3)	ML-IAP ACE
a	3.828	3.309	3.820	3.870	4.150	3.837	3.840	3.812	4.018	3.843	3.990	3.916	3.808	3.743	3.702
b	3.828	3.309	3.820	3.870	4.150	3.837	3.840	3.812	4.018	3.843	3.990	3.916	3.808	3.743	3.702
–	4.577	3.936	3.936	3.755	3.404	3.851	3.252	2.572	4.010	3.454	3.911	4.648	4.624	4.606	0.926
	2.249	2.315	2.312	2.315	2.534	2.297	2.351	2.243	2.321	2.300	2.306	2.390	2.366	2.347	2.242
h	0.421	1.304	0.690	0.327	0.820	0.608	0.784	0.427	0.0‡	0.610	0.0‡	0.774	0.859	0.913	0.675
C_{11}	69.2	0.006	59.6	50.1	38.4	47.1	36.4	30.8	87.4	49.0	79.7	24.8	28.8	31.7	55.0
C_{22}	69.2	0.006	59.6	50.1	38.4	47.1	36.4	30.8	87.4	49.0	79.7	24.8	28.8	31.7	55.0
C_{12}	22.1	0.002	4.1	5.5	4.4	10.6	6.1	5.4	9.2	14.1	23.9	5.6	6.3	9.0	2.7
C_{33}	23.6	0.002	27.7	22.3	17.0	18.3	15.1	12.7	39.1	17.5	27.9	9.6	11.2	11.4	26.1
	91.3	0.008	63.7	55.7	42.7	57.7	42.6	36.2	96.6	63.1	103.6	30.4	35.1	40.6	57.7
	47.1	0.004	55.5	44.6	34.0	36.5	30.3	25.5	78.2	34.9	55.8	19.2	22.4	22.7	52.3
	47.1	0.004	55.5	44.6	34.0	36.5	30.3	25.5	78.2	34.9	55.8	19.2	22.4	22.7	52.3
平均绝对百分比误差（MAPE）		79.467	22.781	19.235	37.991	23.569	37.306	35.911	36.630	22.977	19.433	45.306	43.176	42.060	28.792

‡ 输入的 LBS 收敛到 FS。

表 4：通过分子计算得到的三角哑铃硅烯（TDS）的结构和力学性质：晶格参数 a、b (Å), 平均内聚能 (eV/atom)，平均键长(Å)，平均高度 h (Å)，二维弹性常数 Cij (N/m)、二维开尔文模量 (N/m)、平均绝对百分比误差（MAPE）(%)。

方法	DFT	Tersoff 1988	Tersoff 2007	Tersoff 修正嵌入原子法 2017	2007	MEAM 2011	SW 1985	SW 2014	EDIP	ReaxFF	COMB	ML-IAP SNAP	ML-IAP qSNAP	ML-IAP SO(3)	ML-IAP ACE
a	6.434	6.480	6.471	6.475	7.140	6.511	6.600	6.291	6.759	6.380	6.574	6.777	6.797	6.518	6.448
b	6.434	6.480	6.471	6.475	7.140	6.511	6.600	6.291	6.759	6.380	6.574	6.777	6.797	6.518	6.448
–	4.679	4.248	3.865	3.890	3.427	3.865	3.322	2.591	4.075	3.551	3.723	4.726	4.693	4.607	0.4606
	2.331	2.362	2.371	2.362	2.590	2.376	2.431	2.315	2.416	2.344	2.387	2.398	2.404	2.505	2.429
h	2.734	2.870	3.110	3.056	3.228	2.856	3.260	3.100	2.628	3.115	2.994	2.518	2.540	3.058	2.649
C_{11}	100.5	79.4	67.9	51.4	69.9	80.5	78.7	68.4	60.3	94.6	70.8	44.9	36.7	35.3	90.5
C_{22}	100.5	79.4	67.9	51.4	69.9	80.5	78.7	68.4	60.3	94.6	70.8	44.9	36.7	35.3	90.5
C_{12}	52.3	63.2	39.4	39.0	34.9	31.0	39.6	35.1	30.2	39.7	25.6	16.1	16.7	10.2	33.0
C_{33}	24.1	8.1	14.3	6.2	17.5	24.8	19.6	16.7	15.1	27.4	22.6	14.4	10.0	12.5	28.8
	152.8	142.7	107.3	90.5	104.8	111.5	118.2	103.5	90.5	134.3	96.4	61.1	53.4	45.5	123.5
	48.3	16.2	28.5	12.4	35.0	49.5	39.1	33.3	30.1	54.9	45.2	28.8	20.1	25.0	57.6
	48.3	16.2	28.5	12.4	35.0	49.5	39.1	33.3	30.1	54.9	45.2	28.8	20.1	25.0	57.6
平均绝对百分比误差TDS		23.790	22.993	34.815	23.821	11.809	17.077	23.723	25.537	10.755	16.881	31.929	38.100	37.357	19.317

表 5：蜂窝哑铃硅烯（HDS）的结构和力学性质（分子计算结果）：晶格参数 a、b（Å）、平均内聚能（eV/原子）、平均键长（Å）、平均高度 h（Å）、二维弹性常数 Cij（N/m）、二维开尔文模量（N/m）、平均绝对百分比误差（MAPE）（%）。

方法	DFT	Tersoff 1988	Tersoff 2007	Tersoff 修正嵌入原子法 2017	2007	MEAM 2011	SW 1985	SW 2014	EDIP	ReaxFF	COMB	ML-IAP SNAP	ML-IAP qSNAP	ML-IAP SO(3)	ML-IAP ACE
a	6.297	6.074†	6.133	6.114	5.608†	6.364†	6.272	6.063	6.349†	6.048	6.344	6.644	6.510†	5.030†	6.250
b	6.297	5.864†	6.133	6.114	6.127†	6.279†	6.272	6.063	6.389†	6.048	6.344	6.644	6.344†	5.818†	6.250
–	4.679	4.334	3.738	3.816	3.663	4.008	3.243	2.467	4.105	3.366	3.481	4.766	4.699	4.873	0.391
	2.399	2.398	2.425	2.408	2.641	2.405	2.495	2.394	2.489	2.396	2.511	2.436	2.457	2.612	2.371
h	2.635	2.596	3.050	3.006	3.500	2.990	3.189	3.010	2.365	2.952	2.989	2.404	2.438	2.162	2.559
C_{11}	141.6	89.3	59.4	64.0	56.2	78.2	57.4	35.6	78.0	75.4	14.3	41.9	30.8	76.5	69.6
C_{22}	141.6	46.3	59.4	64.0	57.1	82.4	57.4	35.6	45.5	75.4	14.3	41.9	16.0	73.0	69.6
C_{12}	96.4	20.4	24.6	31.3	17.3	7.1	25.3	14.9	46.3	31.4	-37.4	16.2	13.8	-10.2	10.6
C_{33}	22.6	24.8	17.4	16.3	16.7	26.2	16.0	10.4	9.6	22.0	25.8	12.9	11.7	2.7	29.5
	238.0	102.1	84.0	95.3	76.6	87.8	82.7	50.6	119.7	106.8	51.7	58.1	41.2	84.9	80.1
	45.2	57.7	34.8	32.7	44.5	72.9	32.0	20.7	13.6	43.9	-23.1★	25.7	24.3	64.7	59.0
	45.2	25.5	34.8	32.7	-1.2★	52.3	32.0	20.7	9.2	43.9	51.7	25.7	23.4	5.5	59.0
MAPEHDS		28.361	30.540	29.931	39.880	30.392	33.503	45.400	37.500	22.740	51.780	37.684	41.062	45.571	37.134

† 势函数未能再现结构的正确对称性（a≠b），★开尔文模量为负　　表明其缺乏力学稳定性。

表 6：通过分子计算得到的大蜂窝哑铃硅烯（LHDS）的结构和力学性质：晶格参数 a、b（Å），平均内聚能（eV/atom），平均键长（Å）、平均高度 h（Å）、二维弹性常数 Cij（N/m）、二维开尔文模量（N/m）、平均绝对百分比误差（MAPE）（%），以及通过分子动力学（MD）模拟中归一化的时间步/秒衡量的相对性能。

方法	DFT	Tersoff 1988	Tersoff 2007	Tersoff 修正嵌入原子法 2017	2007	MEAM 2011	SW 1985	SW 2014	EDIP	ReaxFF	COMB	ML-IAP SNAP	ML-IAP qSNAP	ML-IAP SO(3)	ML-IAP ACE
a	7.334	7.000†	7.249	7.236	7.900†	7.363	7.403	7.062	7.705	7.167	7.422	7.648	7.741	7.427	7.393
b	7.334	6.978†	7.249	7.236	7.560†	7.363	7.403	7.062	7.705	7.167	7.422	7.648	7.741	7.427	7.393
–	4.769	4.468	3.897	4.004	3.505	3.911	3.399	2.602	4.113	3.623	3.646	4.804	4.794	4.698	0.370
	2.357	2.381	2.387	2.369	2.627	2.407	2.456	2.345	2.438	2.370	2.454	2.436	2.403	2.385	2.515
h	2.683	2.692	3.109	3.050	3.050	2.857	3.250	3.100	2.637	3.112	2.994	2.538	2.562	2.700	2.712
C_{11}	104.5	2.3	78.5	68.6	45.6	88.0	84.5	73.0	53.7	99.0	53.1	44.6	43.8	25.9	59.8
C_{22}	104.5	7.3	78.5	68.6	56.2	88.0	84.5	73.0	53.7	99.0	53.1	44.6	43.8	25.9	59.8
C_{12}	52.7	-13.1	42.3	25.5	22.0	29.9	46.1	38.9	36.0	40.4	31.7	16.1	19.1	0.4	15.2
C_{33}	25.9	9.0	18.1	21.6	14.0	29.0	19.2	17.1	8.8	29.3	10.7	14.2	12.3	12.7	22.3
	157.2	18.5	120.8	94.1	73.6	117.9	130.6	111.9	89.7	139.4	84.8	60.6	62.8	26.4	75.0
	51.8	17.8	36.2	43.1	28.8	58.1	38.4	34.1	17.6	58.6	21.5	28.5	24.7	25.5	44.7
	51.8	-8.5★	36.2	43.1	27.4	58.1	38.4	34.1	17.6	58.6	21.5	28.5	24.7	25.5	44.7
$MAPE_{LHDS}$		55.693	18.373	20.287	34.499	13.636	16.741	23.855	33.228	10.809	33.466	33.219	34.603	40.928	29.310
†平均绝对百分比误差		223.826	129.306	150.256	164.364	82.553	130.721	155.483	165.722	78.185	137.365	181.422	205.224	201.861	124.310
时间步/秒		387.2	382.7	355.2	505.7	416.9	904.9	1753.8	2032.1	23.6	26.4	7.9	4.7	4.2	1.0

† 势函数未能再现结构的正确对称性（a≠b），★开尔文模量为负　　，表明其力学稳定性不足。

4 结论

本文对多种硅原子间势在重现五种硅烯（二维硅）多晶型性质方面的表现进行了系统的定量比较研究。为了比较第2.2.1节所列的十四种势，研究采用了密度泛函理论（DFT）和分子静力学（MS）计算得到的平面型（FS）、低翘曲型（LBS）、三角双哑铃型（TDS）、蜂窝哑铃相（HDS）和大型蜂窝双哑铃型（LHDS）硅烯（图1）的结构和力学性质。研究还比较了所分析势的计算成本和性能。可以说，综合考虑性能和计算成本，Tersoff、SW 和 MEAM 类型的经典势似乎是这里的最佳选择。尽管这些势的优化过程中没有使用硅烯多型的数据，但它们仍能很好地重现其性质。这表明它们以物理学为基础，具有自然外推能力，而不仅仅是对数据进行插值。希望本文的研究结果能帮助其他研究人员为各自的用途选择合适的势，并为硅烯新势的参数化提供参考。

补充信息

多晶型的晶体学信息文件（CIF）　　硅烯的 hs。

补充信息文件 1：文件名：Si_FS.cif 文件格式：CIF 标题：平面硅烯（FS）补充信息文件 2：文件名：Si_LBS.cif 文件格式：CIF 标题：低翘曲硅烯（LBS）补充信息文件 3：文件名：Si_TDS.cif 文件格式：CIF 标题：三角哑铃硅烯（TDS）补充信息文件 4：文件名：Si_HDS.cif 文件格式：CIF 标题：蜂窝哑铃硅烯（HDS）补充信息文件 5：文件名：Si_LHDS.cif 文件格式：CIF 标题：大蜂窝哑铃硅烯（LHDS）

Si_FS.cif -- 属于 P1.1 -- 非磁性

data_Si_FS_191

审计创建日期　　222-8-4

审计创建方法 "毕尔巴鄂晶体学服务器" 对称性国际表编号 1 #对称性空间群名称（赫尔曼-莫甘符号） "P11′ 晶胞长度 a 3.85481 晶胞长度 b 3.85481 晶胞长度 c 2. 晶胞角 α 9. 晶胞角 β 9. 晶胞角 γ 12.

loop_ 对称等价位置位点编号
以 x、y、z 表示的对称等价位置

1 x,y,z

loop_ 原子位点标签 原子位点类型符号 原子位点分数坐标 x 原子位点分数坐标 y 原子位点分数坐标 z 原子位点占有率 Si1 硅 .33333 .66667 .5 1. Si2 硅 .66666 .33333 .5 1.

Si_LBS.cif -- 属于 P1.1 -- 非磁性

data_Si_LBS_164

_audit_creation_date 222-8-4 _audit_creation_method "毕尔巴鄂晶体学服务器" _symmetry_Int_Tables_number 1 # _symmetry_space_group_name_H-M "P11'"_cell_length_a 3.82781 _cell_length_b 3.82781 _cell_length_c 2. _cell_angle_alpha 9. _cell_angle_beta 9. _cell_angle_gamma 12.

循环_ 对称等价位置位点编号
以 x、y、z 表示的对称等价位置 1 x,y,z

循环_ 原子位点标签 原子位点类型符号 原子位点分数坐标 x 原子位点分数坐标 y 原子位点分数坐标 z 原子位点占有率
Si1 硅 .33333 .66667 .48915 1. Si2 硅 .66666 .33333 .5185 1.

Si_TDS.cif -- 属于 P1.1 -- 非磁性

data_Si_TDS_189 审计创建日期 222-8-4 审计创建方法 "毕尔巴鄂晶体学服务器" 对称性国际表编号 1 #_symmetry_space_group_name_H-M " P11′_cell_length_a 6.43381 _cell_length_b 6.43381 _cell_length_c 2. _cell_angle_alpha 9. _cell_angle_beta 9. _cell_angle_gamma 12.

循环_ 对称等价位置位点编号
以 x、y、z 表示的对称等价位置 1 x,y,z

loop_ 原子位点标签 原子位点类型符号 原子位点分数坐标 x 原子位点分数坐标 y 原子位点分数坐标 z 原子位点占有率 Si1 硅 . 33333 .66667 .5 1. Si2 硅 . 66666 .33333 .5 1. Si3 硅 . 29982 . .5 1.

Si4 硅 . .29982 .5 1.
Si5 硅 .718 .718 .5
1. Si6 硅 . . .4322 1.
Si7 硅 . . .56798 1.

Si_HDS.cif -- 属于 P1.1 -- 非磁性

data_Si_HDS_189 审计创建日期 222-8-4 审计创建方法 "毕尔巴鄂晶体学服务器" 对称性国际表编号 1 #_symmetry_space_group_name_H-M " P11'"晶胞长度 a 6.29732 晶胞长度 b 6.29732 晶胞长度 c 2. 晶胞角 α 9. 晶胞角 β 9. 晶胞角 γ 12.

loop_ 对称等价位置位点编号
以 x、y、z 表示的对称等价位置 1 x,y,z

loop_ 原子位点标签 原子位点类型符号 原子位点分数坐标 x

原子位点分数坐标 y 原子位点
分数坐标 z 原子位点占有率
Si1 硅 . . .5 1. Si2 硅 .35934 . .
5 1. Si3 硅 . .35934 .5 1. Si4 硅
.6466 .6466 .5 1. Si5 硅 .
33333 .66667 .56577 1. Si6 硅 .
66666 .33333 .43423 1. Si7 硅 .
33334 .66667 .43423 1. Si8 硅 .
66667 .33334 .56577 1.

Si_LHDS.cif -- 属于 P1.1 -- 非磁性

data_Si_LHDS_191 _审计创建日期 222-8-4 _审计创建方法 "毕尔巴鄂晶体学服务器" _对称性国际表编号 1 #_对称性空间群名称（赫尔曼-莫甘符号） "P11'"_晶胞长度 a 7.33381 _晶胞长度 b 7.33381 _晶胞长度 c 2. _晶胞角 α 9. _晶胞角 β 9. _晶胞角 γ 12.

循环_

对称等价位置位点编号

以 x、y、z 表示的对称等价位置

1 x,y,z

loop_ 原子位点标签 原子位点
类型符号 原子位点分数坐标 x
原子位点分数坐标 y 原子位点
分数坐标 z 原子位点占有率
Si1 硅 .18192 .36384 .5 1. Si2
硅 .8188 .18192 .5 1. Si3 硅 .
63616 .8188 .5 1. Si4 硅 .
8188 .63616 .5 1. Si5 硅 .
18192 .8188 .5 1. Si6 硅 .
36384 .18192 .5 1. Si7 硅 .
33333 .66667 .43292 1. Si8 硅 .
66666 .33333 .43292 1. Si9 硅 .
66666 .33333 .5678 1. Si1 硅 .
33333 .66666 .5678 1.

致谢

此外，还通过华沙大学（ICM UW）数学与计算建模跨学科中心和波兹南超级计算与网络中心（PSNC）位于Ochota生物中心的 GRAFEN计算集群获得了额外支持。

资助

本研究由国家科学中心（NCN – 波兰）研究项目资助：编号 2021/43/B/ST8/03207。

参考文献

1. Akinwande, D.; Brennan, C. J.; Bunch, J. S.; Egberts, P.; Felts, J. R.; Gao, H.; Huang, R.; Kim, J.-S.; Li, T.; Li, Y.; Liechti, K. M.; Lu, N.; Park, H. S.; Reed, E. J.; Wang, P.; Yakob-son, B. I.; Zhang, T.; Zhang, Y.-W.; Zhou, Y.; Zhu, Y. 《极端力学快报》2017年, 13, 42–77. doi:10.1016/j.eml.2017.01.008。

2. Lei, Y.; Zhang, T.; Lin, Y.-C.; Granzier-Nakajima, T.; Bepete, G.; Kowalczyk, D. A.; Lin, Z.; Zhou, D.; Schranghamer, T. F.; Dodda, A.; Sebastian, A.; Chen, Y.; Liu, Y.; Pour-tois, G.; Kempa, T. J.; Schuler, B.; Edmonds, M. T.; Quek, S. Y.; Wurstbauer, U.; Wu, S. M.; Glavin, N. R.; Das, S.; Dash, S. P.; Redwing, J. M.; Robinson, J. A.; Terrones, M. 《ACS 纳米科学 Au》2022年，2 (6)，450–485。doi:10.1021/acsnanoscienceau.2c00017。

3. Roome, N. J.; Carey, J. D. 《ACS 应用材料与界面》2014，6 (10)，7743–7750。doi:10.1021/am501022x。

4. Spencer, M.; Morishita, T.《硅烯：结构、性质与应用》；施普林格·恰姆，2016年；第235卷。doi:10.1007/978-3-319-28344-9。

5. Hale, L. M.; Trautt, Z. T.; Becker, C. A.《材料科学与工程中的建模与仿真》2018年，26（5），055003。doi:10.1088/1361- 651x/aabc05。https://www.ctcms.nist.gov/potentials/system/Si/

6. Cahangirov, S.; Topsakal, M.; Aktürk, E.; Şahin, H.; Ciraci, S. 《物理评论快报》2009年，*102*，236804。doi:10.1103/PhysRevLett.102.236804。

7. Cahangirov, S.; Özçelik, V. O.; Xian, L.; Avila, J.; Cho, S.; Asensio, M. C.; Ciraci, S;Ru-bio, A. 《物理评论B》 2014年，*90*，035448。doi:10.1103/PhysRevB.90.035448。

8. Lee, C.-C.; Fleurence, A.; Friedlein, R.; Yamada-Takamura, Y.; Ozaki, T. 《物理评论B》2013年, 88, 165404. doi:10.1103/PhysRevB.88.165404.

9. Balamane, H.; Halicioglu, T.; Tiller, W. A. 《物理评论B》1992年, 46, 2250–2279. doi:10.1103/PhysRevB.46.2250.

10. Lysogorskiy, Y.; Hammerschmidt, T.; Janssen, J.; Neugebauer, J.; Drautz, R. 《材料科学与工程中的建模与仿真》2019年，27 (2)，025007。doi:10.1088/1361-651x/aafd13。

11. Michelin, J. V.; Gonçalves, L. G.; Rino, J. P. 《分子液体杂志》2019年，285，488–499。doi:/10.1016/j.molliq.2019.04.076。

12. Cahangirov, S.; Sahin, H.; Le Lay, G.; Rubio, A. 《硅烯物理学及其他二维材料导论》；施普林格·恰姆，2017年；第930卷。doi:10.1007/978-3-319-46572-2。

13. Andrew, R. C.; Mapasha, R. E.; Ukpong, A. M.; Chetty, N. 《物理评论B》2012年，85，125428。doi:10.1103/PhysRevB.85.125428。

14. Maździarz, M. 《材料》2021年，14（3）。doi:10.3390/ma14030519。

15. Hohenberg, P.；Kohn, W. 《物理评论》1964年，136，B864–B871。doi:10.1103/PhysRev.136.B864。16. Kohn, W.；Sham, L. J. 《物理评论》1965年，140，A1133–A1138。doi:10.1103/PhysRev.140.A1133。

17. Gonze, X.; Jollet, F.; Araujo, F. A.; Adams; Amadon, B.; Applencourt, T.; Audouze, C.; Beuken, J.-M.; Bieder, J.; Bokhanchuk, A.; Bousquet, E.; Bruneval, F.; Caliste, D.; Côté, M.;Dahm, F.; Pieve, F. D.; Delaveau, M.; Gennaro, M. D.; Dorado, B.; Espejo, C.; Geneste, G.; Genovese, L.; Gerossier, A.; Giantomassi, M.; Gillet, Y.; Hamann, D.; He, L.; Jomard, G.;Janssen, J. L.; Roux, S. L.; Levitt, A.; Lherbier, A.; Liu, F.; Lukačević, I.; Martin, A.; Mar-tins,C.; Oliveira, M.; Poncé, S.; Pouillon, Y.; Rangel, T.; Rignanese, G.-M.; Romero, A.; Rousseau, B.; Rubel, O.; Shukri, A.; Stankovski, M.; Torrent, M.; Setten, M. V.; Troeye, B. V.; Verstraete, M.; Waroquiers, D.; Wiktor, J.; Xu, B.; Zhou, A.; Zwanziger, J. 《计算机物理学通讯》2016年，205，106 –131。doi:10.1016/j.cpc.2016.04.003。

18. Gonze, X.; Amadon, B.; Antonius, G.; Arnardi, F.; Baguet, L.; Beuken, J.-M.; Bieder, J.; Bottin, F.; Bouchet, J.; Bousquet, E.; Brouwer, N.; Bruneval, F.; Brunin, G.; Cavignac, T.; Charraud, J.-B.; Chen, W.; Côté, M.; Cottenier, S.; Denier, J.; Geneste, G.; Ghosez, P.; Gi-antomassi, M.; Gillet, Y.; Gingras, O.; Hamann, D. R.; Hautier, G.; He, X.; Helbig, N.; Holzwarth, N.; Jia, Y.; Jollet, F.; Lafargue-Dit-Hauret, W.; Lejaeghere, K.; Marques, M. A.; Martin, A.; Martins, C.; Miranda, H. P.; Naccarato, F.; Persson, K.; Petretto, G.; Planes, V.; Pouillon, Y.; Prokhorenko, S.; Ricci, F.; Rignanese, G.-M.; Romero, A. H.; Schmitt, M. M.; Torrent, M.; van Setten, M. J.; Troeye, B. V.; Verstraete, M. J.; Zérah, G.; Zwanziger, J. W. 《计算机物理学通讯》2020年，248，107042。doi:10.1016/j.cpc.2019.107042。

19. Bloch, F. 《物理学杂志》 1929年，57，545–555。doi:10.1007/BF01340281。

20. Perdew, J. P.; Wang, Y. 《物理评论B》 1992年，45，13244–13249。doi:10.1103/PhysRevB.45.13244。

21. Hamann, D. R. 《物理评论B》 2013年，88，085117。doi:10.1103/PhysRevB.88.085117。

22. Hamann, D. R.; Wu, X.; Rabe, K. M.; Vanderbilt, D. 《物理评论B》 2005年，71，035117。doi:10.1103/PhysRevB.71.035117。

23. Maździarz, M.; Mościcki, T. 《材料》 2020年，13（13），3022。doi:10.3390/ma13133022。

24. Maździarz, M. 《二维材料》2019年, 6 (4), 048001. doi:10.1088/2053-1583/ab2ef3.

25. Maździarz, M.; Psiuk, R.; Krawczyńska, A.; Lewandowska, M.; Mościcki, T. 《土木与机械工程档案》 2022年, *22* (4), 193. doi:10.1007/s43452-022-00513-6.

26. Hinuma, Y.; Pizzi, G.; Kumagai, Y.; Oba, F.; Tanaka, I. 《计算材料科学》2017年, 128, 140 –184. doi:10.1016/j.commatsci.2016.10.015.

27. Grimvall, G.; Magyari-Köpe, B.; Ozoliņš, V.; Persson, K. A. 《现代物理评论》2012年, 84, 945–986. doi:10.1103/RevModPhys.84.945.

28. Tadmor, E. B.; Miller, R. E. 《材料》建模：连续体、原子尺度与多尺度技术；剑桥大学出版社，2011年；doi:10.1017/CBO9781139003582.

29. Maździarz, M.; Young, T. D.; Jurczak, G. 力学档案 2011年, 63 (5- 6), 533. http://am.ippt.pan.pl/am/article/view/v63p533

30. Maździarz, M.; Gajewski, M. 《工程与科学中的计算机建模》2015年, 105 (2), 123–150. doi:10.3970/cmes.2015.105.123.

31. Plimpton, S. 计算物理学杂志 1995年, 117 (1), 1 –19. doi:10.1006/jcph.1995.1039.

32. Stukowski, A. 建模、仿真与材料科学工程 2010年, 18, 015012. doi:10.1088/0965-0393/18/1/015012.

33. Ters off, 《物理评论B》1988年，37，6991–7000。doi:10.1103/PhysRevB.37.6991 .

34. Kumagai, T.; Izumi, S.; Hara, S.; Sakai, S. 《计算材料科学》2007年，39 (2)，457–464。doi:10.1016/j.commatsci.2006.07.013。

35. Pun, G. P. P.; Mishin, Y. 《物理评论B》 2017年，*95*，224103。doi:10.1103/PhysRevB.95.224103。36. Lee, B.-J. CALPHAD 2007年，31 (1)，95–104。doi:10.1016/j.calphad.2006.10.002。

37. Du, Y. A.; Lenosky, T. J.; Hennig, R. G.; Goedecker, S.; Wilkins, J. W. 《固体物理学报》(b) 2011年，248 (9)，2050–2055。doi:10.1002/pssb.201147137。

38. Stillinger, F. H.; Weber, T. A. 《物理评论B》1985年, 31, 5262–5271. doi:10.1103/PhysRevB.31.5262.

39. Zhang, X.; Xie, H.; Hu, M.; Bao, H.; Yue, S.; Qin, G.; Su, G. 《物理评论B》2014, 89, 054310. doi:10.1103/PhysRevB.89.054310.

40. Justo, J. a. F.; Bazant, M. Z.; Kaxiras, E.; Bulatov, V. V.; Yip, S. 《物理评论B》1998, 58, 2539–2550. doi:10.1103/PhysRevB.58.2539.

41. Psofogiannakis, G.; van Duin, A. C. 表面科学 2016年, 646, 253–260. doi:10.1016/j.susc.2015.08.019. 多相催化表面科学：纪念 Richard Lambert 的特刊

42. Yu, J.; Sinnott, S. B.; Phillpot, S. R. 《物理评论B》2007年, 75, 085311. doi:10.1103/PhysRevB.75.085311.

43. Zuo, Y.; Chen, C.; Li, X.; Deng, Z.; Chen, Y.; Behler, J.; Csányi, G.; Shapeev, A. V.;Thomp-son, A. P.; Wood, M. A.; Ong, S. P. 《物理化学杂志A》2020年, 124 (4), 731–745. doi:10.1021/acs.jpca.9b08723.

44. Yanxon, H.; Zagaceta, D.; Wood, B. C.; Zhu, Q. 《化学物理杂志》 2020年, *153*(5), 054118. doi:10.1063/5.0014677.

45. Lysogorskiy, Y.; Oord, C. v. d.; Bochkarev, A.; Menon, S.; Rinaldi, M.;Hammerschmidt, T.; Mrovec, M.; Thompson, A.; Csányi, G.; Ortner, C.; Drautz, R.npj计算材料 2021年, 7 (1), 97. doi:10.1038/s41524-021-00559-9.

46. Nye, J.; Nye, P. 晶体的物理性质：通过张量和矩阵表示；牛津科学出版物；克拉伦登出版社, 1985年.

47. Maździarz, M.; Gajewski, M. 《工程与科学中的计算机建模》2015年, 105 (2), 123–150. doi:10.3970/cmes.2015.105.123.

48. Yoo, S.; Lee, B.; Kang, K. 纳米技术 2021年, 32 (29), 295702. doi:10.1088/1361-6528/abf26d.