

П
126



Н. Н. Дегтяренко, А. И. Подливаев

001-85

ИН 3361

ИФН

**ОПИСАНИЕ РАСПРОСТРАНЯЮЩЕЙСЯ
КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ ФАЗЫ
МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО**

МОСКВА 1985

Министерство высшего и среднего специального
образования СССР

Московский ордена Трудового Красного Знамени
инженерно-физический институт

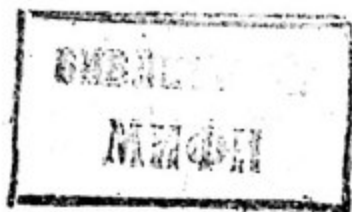
17
426

Н.Н.Дегтяренко, А.И.Подливаев

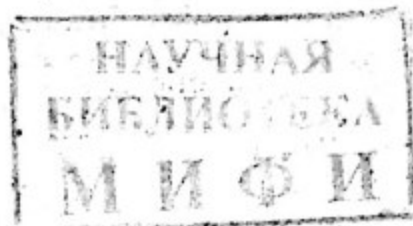
ОПИСАНИЕ РАСПРОСТРАНЯЮЩЕЙСЯ
КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ ФАЗЫ
МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО

Препринт 001-85

Утверждено
редсоветом института



Москва 1985



УДК 536.421.4

Дегтяренко Н.Н., Подливаев А.И. Описание распространяющейся кристаллической фазы методом Монте-Карло. - М.:Препринт МИФИ, 012-85, 1985. - 8 с.

Предложен новый метод моделирования кристаллизации аморфной пленки. Результаты заметно отличаются от тех, которые получены в более ранних теоретических моделях. Показано, что шероховатость фронта кристаллической фазы принципиально влияет на скорость распространения фазы.

© Московский инженерно-физический институт, 1985 г.

Рукопись поступила в издательский отдел 3.1.85 г.

Редактор Н.Н.Поспелова
Тех. редактор Н.М.Воронцова
Корректор Е.В.Крючкова

Л.-96695 Подписано в печать 19 [и] 1985 г. формат 60x84 1/16
Объем 0,5 п.л. Уч. -изд.л. 0,25 Тираж 120 экз.
Изд. № 012-85 Заказ 87 Цена 10 коп

Типография МИФИ, Каширское шоссе, д. 31

Для получения аморфного состояния того или иного вещества часто и эффективно применяется метод конденсации данного вещества из газовой фазы на холодную подложку. Аморфный образец в этом случае имеет форму тонкой пленки. Аморфные сплавы и соединения являются, как правило, метастабильными и при определенных условиях переходят в кристаллическую фазу. Важнейшую роль в таком переходе играют температура кристаллизующегося вещества и наличие зародышей кристаллической фазы. В работах [1] и [2] было показано, что в случае осаждения аморфной пленки на холодную подложку и достаточно высокой энергии, выделяемой аморфным веществом, возможна "лавинная" кристаллизация. Под этим термином подразумевается следующее: при достижении пленкой некоторой критической толщины количество тепла, выделяемое на границе растущего кристаллического зародыша, может оказаться достаточным для разогрева этого участка пленки и, следовательно, заметно увеличивать скорость перехода аморфная \rightarrow кристаллическая фаза, что в свою очередь еще более увеличит тепловыделение. Процесс приобретает лавинный характер, температура фронта значительно превышает первоначальную температуру подложки, соответственно ей возрастает скорость распространения кристаллической фазы, достигая согласно [2] величины 10 - 20 м/с.

Важнейшим фактором в определении критической толщины пленки является температурная зависимость скорости фронта кристаллизации (СФК). В работе [1] результаты были получены для достаточно общего вида температурной зависимости СФК, однако для оценок привлекалась наипростейшая модель плоского фронта. В данной работе определяется СФК исходя из более точной модели. Во-первых, допускается шероховатость фронта и, во-вторых, учитывается разброс энергии активации различных участков фронта перехода вещества из аморфного в кристаллическое состояние.

ОПИСАНИЕ МОДЕЛИ И ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Моделируемое трехмерное вещество разбито на кубические области равного размера. Каждый куб может находиться в двух состояниях: А - аморфное, К - кристаллическое. Аморфный куб может превратиться в кристаллический, обратный переход невозможен. В случае распространения К фазы к ней возможно присоединение атомов не по одному, а целыми группами. Для нача-

ла этого процесса К-фаза присоединяет к себе один наиболее легко активируемый атом группы. После этого оставшиеся атомы данной группы присоединяются атермически. Именно такая группа и моделируется одним кубиком пространства. Энергией активации группы считается соответствующая энергия первого присоединившегося атома. Группа может состоять и только из одного атома. Равенство объемов групп (размеров кубиков) является приближением данной задачи. Каждая грань А кубика имеет свой наиболее легко активируемый атом. Переход А кубика в К кубик возможен только в том случае, когда данный А кубик имеет общую грань (или несколько таковых) с К кубиком. Вероятность перехода определяется по формуле сложения вероятностей начала кристаллизации через каждую грань, касающуюся К фазы. Вероятность dp начала кристаллизации через одну грань за малое время dt равна:

$$dp = \omega \cdot \exp(-E/T) dt,$$

где ω – частотный фактор, который считается приближенно равным частоте Дебая; E – энергия активации грани; T – температура вещества. Таким образом, решается задача методом Монте-Карло, но в отличие от его стандартной модификации, используемой при моделировании твердых тел (работы [3], [4]) элементарным событием является не появление или уход атома из узла решетки, а изменение состояния группы атомов.

Распространение К фазы происходит вдоль оси Z . Сечение исследуемого объема в плоскости (X, Y) является квадратичным и содержит разрез N^2 элементарных кубиков. Задача решается при $N = 5; 10$ и 20 . Граничные условия по (X, Y) были взяты периодичными. Начальные условия задачи: при $Z > 0$ все кубики состоят из А фазы, при $Z < 0$ – из К фазы (рис.1). Область моделирования перемещалась с фронтом распространения К фазы. С течением времени фронт размывался, его длина и скорость выходили на стационарную величину. Зависимость этих стационарных величин от температуры среды и является предметом исследования данной работы. Для определения зависимости скорости от размера моделируемой области вычисления проводились для трех упомянутых ранее значений N (5; 10; 20). Величина E считалась равномерно распределенным случайным образом в интервале $0 < E < E_m$. Плотность вероятности $P(E)$ изображена на рис 2. Выбор E для каждой грани и перевод всего кубика в К фазу осуществляется с помощью программы случайных чисел. Для определения А флуктуаций искомым величин каждый

вариант считался для нескольких различных наборов случайных чисел.

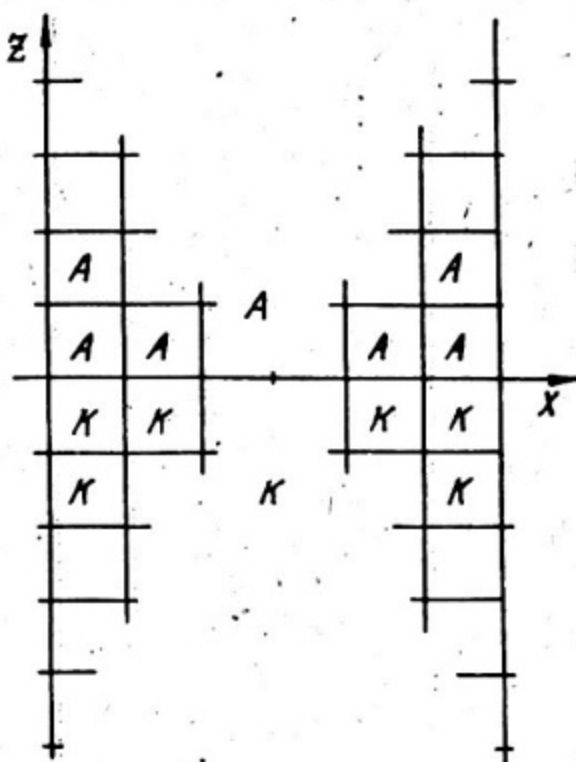


Рис. 1. Начальное состояние среды.

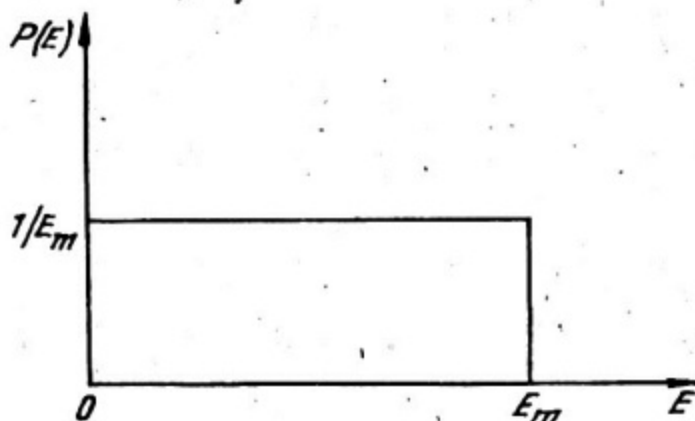


Рис. 2. Плотность вероятности распределения энергии активации

РЕЗУЛЬТАТЫ

В работе исследовалось движение фронта кристаллизации в температурном интервале $0,05 < T/E_m < 1$, а также были рассмотрены скорость фронта, изменение концентрации К фазы по

толщине фронта, время выхода кристаллизации из первоначальной (см. рис. 1) на конечную, стационарную форму. Скорость бесконечно широкого по (X, Y) фронта определялась экстраполяцией по скоростям фронтов, ограниченных в плоскости (X, Y) ($N = 5; 10; 20$). Скорость бесконечно широкого фронта превышала скорость фронта с $N = 20$ на 10%. Флуктуации скорости для исследуемых временных интервалов также составляли 10%. Эта величина определялась из решения задачи при различных наборах используемых в ней случайных чисел. При ширине фронта в 1 кубик ($N = 1$) средняя скорость фронта вычисляется аналитически. Она эквивалентна скорости плоского фронта в работе [1]. Если энергия активации кубиков постоянна и равна E_m , то средняя скорость v_1 определяется по следующей формуле:

$$v_1 = L \cdot \omega \cdot \exp(-E_m/T), \quad (1)$$

где L — линейный размер кубика. Если L порядка межатомного расстояния, то $L \cdot \omega$ порядка скорости звука. В случае, когда энергия распределена как показано на рис. 2, скорость плоского фронта v_2 определяется следующим образом:

$$v_2 = L \cdot \omega \cdot E_m / (T \cdot (\exp(E_m/T) - 1)). \quad (2)$$

При $N > 1$ фронт становится шероховатым. К фаза может распространяться, обходя кубики с высокой энергией активации. Это существенно увеличивает СФК. На рис. 3 изображена температурная зависимость v_1 , v_2 и \mathcal{U} (где v — СФК, полученная в данной работе методом Монте-Карло. Длина фронта LF слабо зависит от температуры в интервале $0,3 < T/E_m < 1$ и резко растет при $T/E_m < 0,3$ (как показано в таблице).

Таблица

N n/n	T/E_m	LF
1	$1 \div 0,3$	5 ± 1
2	0,2	7 ± 1
3	0,1	$9,5 \pm 1$
4	0,05	23 ± 2

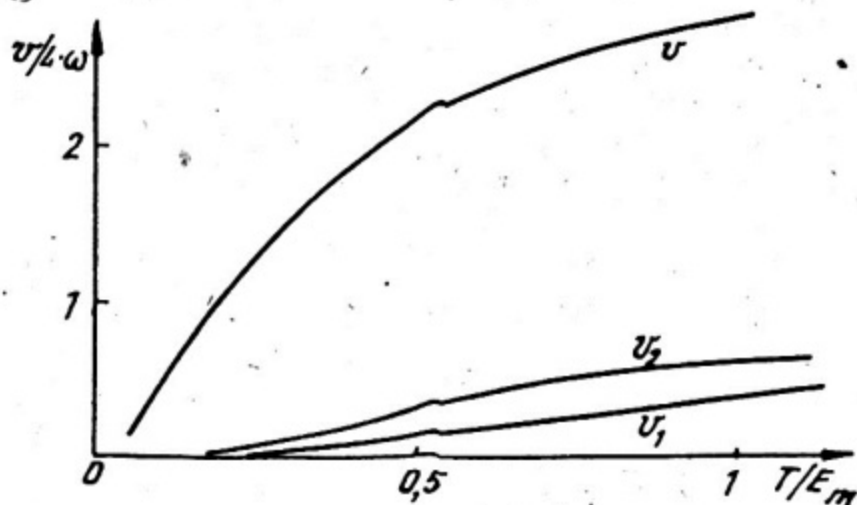


Рис. 3. Температурная зависимость скорости фронта кристаллизации

Разброс величины $L \cdot F$ определялся, так же как и разброс скорости. Кроме скорости и длины фронта, в работе определялось время перехода фронта в шероховатое стационарное состояние. Температурная зависимость этой величины изображена на рис. 4.

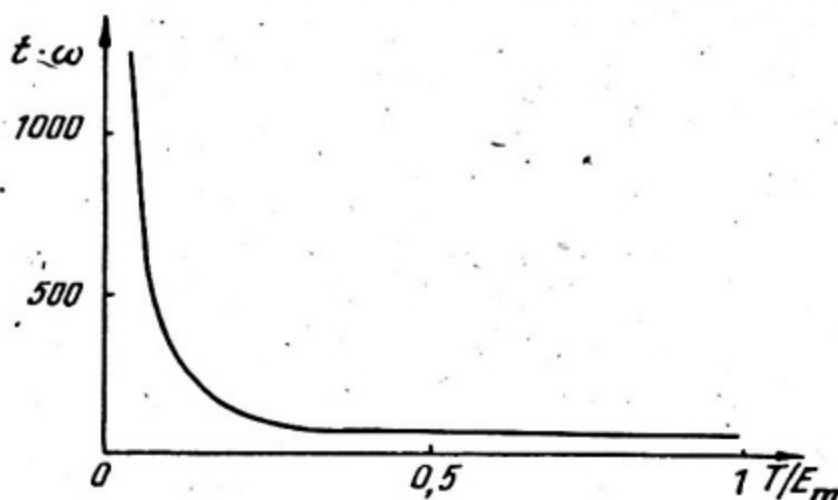


Рис. 4. Температурная зависимость времени перехода фронта в стационарное состояние

Интересен следующий факт: на указанном температурном интервале скорость фронта и время его выхода на стационарную форму изменяется на порядки, а расстояние, проходимое фронтом за время релаксации, практически не зависит от температуры и равно $(150 \pm 20) \cdot L$.

В заключение отметим, что при температуре ниже $T \approx 0,2 E_m$ распространяющаяся кристаллическая фаза на фронте приобретает вид длинных клиньев или шупалец, которые обходят уча-

стки аморфной фазы с высокой энергией активации. Именно с этим связано увеличение длины фронта при этой температуре. Такая форма распространения кристаллической фазы приводит к тому, что скорость шероховатого фронта принципиально превышает скорость гладкого фронта.

ЛИТЕРАТУРА

1. Шкловский В.А. Тепловая неустойчивость фронта фазового превращения при распаде "замороженных" метастабильных состояний. - ЖЭТФ, 1982, т. 82, № 2, с. 536-547.

2. Кузьменко В.М., Мельников В.И., Рахубовский В.А. О механизме спонтанной кристаллизации аморфных металлических пленок. - ЖЭТФ, 1984, т. 86, № 3, с. 1049-1058.

3. *Lavine J.P., Losee D.L. Monte-Carlo treatment of impurity diffusion in polycrystalline films. - J. Appl. Phys., 1984, v. 56, N° 4, p. 924-926.*

4. Моделирование атомного обмена на межфазной границе кристалла методом Монте-Карло. - В сб.: Кинетика и механизм кристаллизации. /Под ред. Н.Н.Сирота. - Минск: Наука и техника, 1973, с. 118-125. Авт.: В.О.Есин, В.И.Данилюк, Ю.М.Плишкин, Г.Л.Подчиненова.