Стеклование и кристаллизация металлических пленок: исследование методом молекулярной динамики.

Писарев В.В., Кирова Е.М.

Glass transition and crystallization of metallic films: a molecular dynamics study.

Pisarev V.V., Kirova E.M.

В работе исследуется кинетика перехода в кристалл наноразмерных пленок расплавов ОЦК металлов. Исследование проводится методом молекулярной динамики для расплавов молибдена и тантала. Для исследования выбраны температуры, лежащие ниже калориметрической температуры стеклования расплава.

Для анализа динамики фазового перехода использовались распределения кристаллических зародышей в пространстве «размер — параметр асферичности». Статистика набиралась по большому числу МД траекторий, соответствующих одним и тем же температуре и плотности. Обнаружены особенности, показывающие отклонение динамики фазового перехода от принятой в классической теории зародышеобразования:

1. Для тонких пленок (6 нм) молибдена и тантала обнаружено, что большая доля МД траекторий имеют увеличенное время жизни по отношению к кристаллизации. Анализ зародышей показывает, что в этих системах есть характерные долгоживущие кластеры размером ~70 атомов.
2. При кристаллизации молибдена обнаружено два механизма кристаллизации: часть траекторий кристаллизуется через рост одного кристаллического кластера присоединением атомов из расплава, часть — через слияние небольших кристаллических зародышей в более крупные.
3. То, при какой скорости охлаждения были получены начальные состояния, меняет механизм кристаллизации и вероятность образования долгоживущих кластеров: в системах, полученных с большой скоростью охлаждения, выше вероятность образования долгоживущих кластеров, а кристаллизация идет в основном по механизму слияния кристаллитов; в системах, полученных с меньшими скоростями охлаждения, уменьшается вероятность появления долгоживущих кластеров, а механизм кристаллизации сдвигается к присоединению атомов из расплава.
4. Для тантала было получено, что при увеличении толщины пленки с 6 нм до 10 нм «долгоживущие» траектории исчезают.

Таким образом, продемонстрировано влияние условий охлаждения и размеров системы на кинетику кристаллизации тонких металлических пленок. В частности, это может означать, что есть фундаментальные ограничения на толщину аморфной металлической пленки, не связанные с возможностью быстрого отведения тепла из середины.

We investigate the kinetics of crystallization of thin films of molten BCC metals. The study is made using the molecular dynamics method on the examples of molybdenum and tantalum. The temperatures studied lie below the calorimetric glass transition temperatures for the melts.

To analyze the dynamics of the phase transition, we used the distributions of the crystalline nuclei in the «size-asphericity parameter» coordicates. The statistics was gathered over a large number of MD trajectories corresponding to the same temperature and density. There are a few features showing the deviation of the crystallization dynamics from the mechanism assumed in the classical nucleation theory:

1. For thin (6 nm) molybdenum and tantalum films it is found that a significant fraction of MD trajectories have a longer lifetime with respect to crystallization. The analysis of the probability densities shows that those systems have characteristic long-lived crystalline clusters with the size of about 70 atoms.
2. We found two mechanisms of crystallization on the example of molybdenum films: some trajectories crystallize through the growth of one crystalline cluster by attachment of atoms from the melt, some — through coalescence of smaller clusters into larger ones.
3. The cooling rate used to obtain the supercooled melt state has a significant effect on the crystallization mechanism and the probability of occurence of the long-lived clusters. In the systems obtained at high cooling rate, the probability of long-lived clusters is higher and coalescence is the dominant crystallization mechanisms.

In the systems obtained at lower cooling rate, the probability of long-lived clusters is lower, and the crystallization mechanism shifts to the attachment.

4. We have found on the example of tantalum films that increasing the film thickness from 6 nm to 10 nm leads to elimination of the long-lived MD trajectories.

In the conclusion, we have demonstrated the effects of the cooling conditions and the system size on the crystallization mechanisms in thin metallic films. In particular, there might be a fundamental limitation on the thickness of an amorphous metallic film not related to the possibility of fast cooling of the material that"s far from the film surface.