

КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ ДВУМЕРНЫХ АНГАРМОНИЧЕСКИХ СТЕКОЛ

© В.А.Лагунов, А.Б.Синани

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Поступила в Редакцию 26 октября 1995 г.)

В окончательной редакции 12 января 1996 г.)

Методом молекулярной динамики исследован процесс формирования двумерных ангармонических поликристаллов из стеклообразного состояния твердого тела. Выявлено спонтанное образование блочно-зернистой структуры при охлаждении моделей. При этом обнаружены скопления дислокаций типа дислокационной стенки, выполняющие роль границ блоков. Установлена решающая роль дислокационных механизмов на всех стадиях эволюции поликристаллов. Показана возможность проявления вращательных мод пластической деформации.

Методы моделирования на ЭВМ широко используются при изучении процессов деформирования и разрушения твердых тел на микроскопическом уровне и для исследования структурных дефектов, возникающих в нагруженном твердом теле [1-9]. Такие исследования ограничивались пока преимущественно материалами, основными дефектами в которых были дислокации и субмикротрещины. В реальных же поликристаллических материалах значительную долю, как правило, составляют дефекты типа границ зерен. До настоящего времени вопросы моделирования структуры поликристаллов в компьютерных экспериментах не получили должного развития. В связи с этим представлялось целесообразным разработать соответствующую методику моделирования.

Для упрощения задачи молекулярно-динамические исследования проводились на двумерной ангармонической модели твердого тела. При этом был использован алгоритм, реализующий идею кристаллизации твердого тела из расплава при его охлаждении. С его помощью в начальной фазе процесса в заданной области двумерного пространства формируется модельный образец со случайным распределением атомов. Алгоритм позволяет при выборке координат атомов отсеивать те из них, которые оказываются расположенными слишком близко от соседних атомов. В нашем случае это пороговое расстояние было принято на 10% ниже равновесного межатомного расстояния a . Размер области, которая заполнялась атомами, составлял $30a \times 30a$ в начальный момент времени $t = 0$. Один из полученных таким путем стеклообразных образцов показан на рис. 1, а. Как видно, исходный аморфный

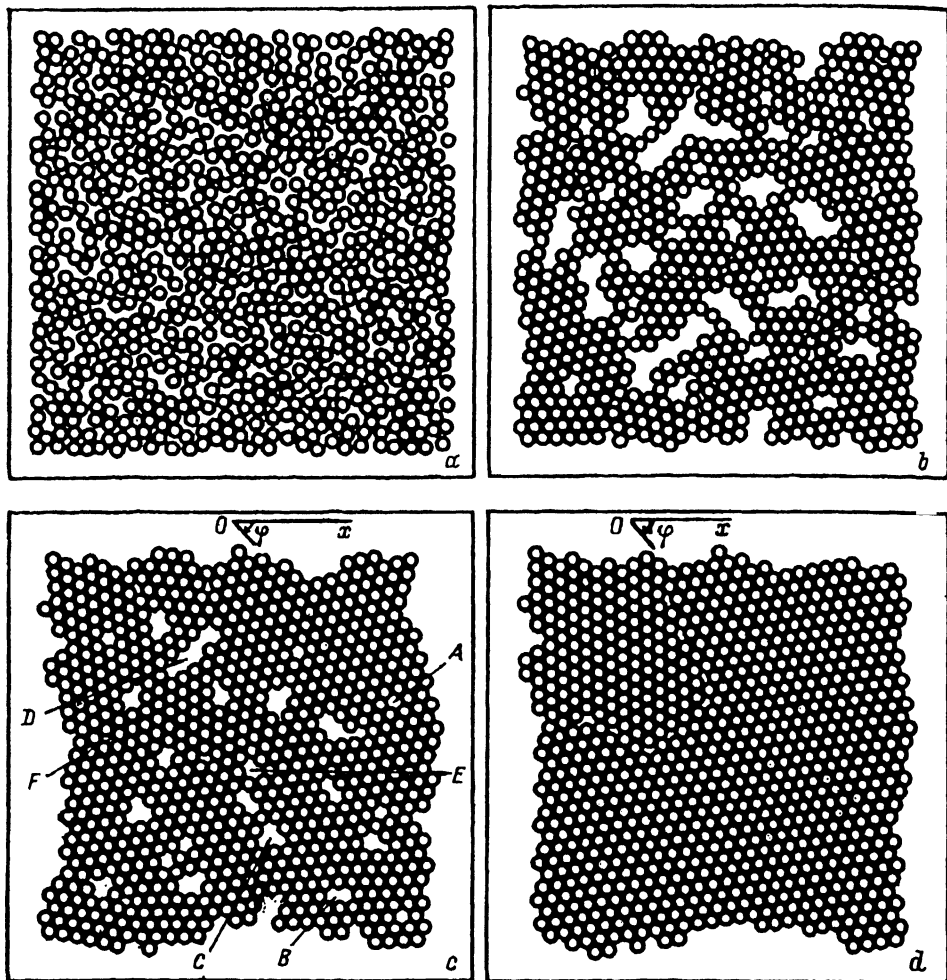


Рис. 1. Кинетика кристаллизации стеклообразного монослоя. Число атомов в модели N : $a-c$ — 768, d — 825. Текущее время: a — 0, b — 5, c — 85.2, d — 167.3.

образец имеет высокую пористость, которая из сравнения плотностей полученной модели и плотноупакованной треугольной решетки составляет $\sim 20\%$.

В начальный момент времени все атомы модели рассматривались неподвижными. Однако под действием сил межатомного взаимодействия в модели возникают сложные ангармонические колебания атомов. При этом, как показали предварительные расчеты методом молекулярной динамики, длительность переходного периода, в течение которого стабилизируется усредненная во времени полная кинетическая энергия всех атомов системы, составляет порядка 3–5 периодов решеточных колебаний.

Интегрирование уравнений движения атомов проводилось по методике, близкой к описанной в [10]. Однако в отличие от одномерного случая с целью экономии машинного времени для моделирования меж-

атомного взаимодействия использовался модифицированный потенциал Леннарда-Джонса (ПЛД)

$$U(r) = D \left[\left(\frac{a}{r} \right)^{12} - 2 \left(\frac{a}{r} \right)^6 \right] K(r), \quad (1)$$

где a — равновесное межатомное расстояние, D — энергия диссоциации межатомной связи, r — расстояние между атомами, $K(r)$ — корректирующий множитель, определяемый соотношениями

$$\begin{aligned} K(r) &= 1, & r &\leq r_1, \\ K(r) &= \left[1 - \left(\frac{r - r_1}{r_2 - r_1} \right)^2 \right]^2, & r_1 &< r < r_2, \\ K(r) &= 0, & r &\geq r_2. \end{aligned} \quad (1a)$$

Параметры r_1 и r_2 выбирались так, чтобы величина r_1 была близка к расстоянию $r_{\max} = 1.1087$ (в единицах a), при котором ПЛД имеет точку перегиба и характеризуется максимальной силой взаимодействия, а радиус обрезания потенциала r_2 был несколько меньше радиуса второй координационной сферы в плотноупакованной треугольной решетке. Этим условиям удовлетворяют параметры $r_1 = 1.1$ и $r_2 = 1.7$ (в единицах a), которые были приняты в работе.

Введение коррекции (1a) улучшает свойства потенциала, превращая его в короткодействующий гладкий потенциал. Нетрудно убедиться в том, что сила взаимодействия между атомами, определяемая дифференцированием выражения (1), является непрерывной функцией во всей области изменения r , падая от нуля без разрыва в точке $r = r_2$. При этом в области $r < r_1$ потенциал (1) точно совпадает с ПЛД.

В компьютерных экспериментах осуществлялась кристаллизация исходного аморфного образца путем его охлаждения. Для этого был построен итерационный алгоритм, по которому в процессе интегрирования уравнений движения атомов производилось мгновенное обращение в нуль скоростей всех атомов системы всякий раз, как только полная кинетическая энергия атомов начинала падать после достижения ею максимального значения. Итерационный процесс отбора тепла из системы завершался, когда все атомы системы оставались практически неподвижными, т.е. когда система приходила в состояние метастабильного равновесия, соответствующего нулевой температуре. Достижение этого условия контролировалось путем сопоставления общей кинетической энергии атомов с пороговой энергией, которая составляла ничтожно малую величину $10^{-8}D$. В экспериментах кристаллизация завершалась, когда кинетическая энергия атомов на очередной итерации не превосходила указанную выше пороговую величину.

Для иллюстрации и оценки скорости процесса кристаллизации на рис. 1 кроме образца с начальным случайным распределением атомов в момент времени $t = 0$ приведены также его состояние, зарегистрированное спустя примерно 10 периодов решеточных колебаний (b), и метастабильное состояние в конце кристаллизации образца (при $t = 85.2$) (c), которое в дальнейшем уже не изменялось. Здесь время t указано

в безразмерных величинах, выраженных в единицах $t_0 = a\sqrt{m/D}$, где m — масса атома (см. [10]).

Наблюдаемую необычайно быструю кристаллизацию можно понять, если учесть, что охлаждение образца производилось без участия процессов теплопроводности, так как отбор тепла осуществлялся одновременно во всем образце, а не только от граничных атомов модели. Подобный режим охлаждения, по-видимому, наиболее близок к охлаждению при кристаллизации тонких пленок на массивной теплопроводящей подложке.

Данные рис. 1, а-с совместно с другими результатами машинных экспериментов явно свидетельствуют о стадийном характере развития процесса кристаллизации. В частности, из них следует, что в начальной быстрой фазе кристаллизации, продолжающейся всего лишь несколько периодов решеточных колебаний, происходит зарождение большого числа плотноупакованных микрокристаллитов (рис. 1, б), увеличивающихся в размере путем локальной перегруппировки атомов. При этом в начальной фазе внешние границы модели не успевают сместиться на заметное расстояние, и средняя плотность модели существенно не меняется, а свободный объем, диффузно рассеянный первоначально по всей модели, собирается в основном внутри модели по границам микрокристаллитов, а также в виде вакансий и микропор.

Во второй фазе кристаллизации происходит укрупнение микрокристаллитов путем их объединения друг с другом. В результате этого процесса суммарный объем микропор заметно уменьшается за счет перемещения внешних границ модели. Полученные результаты дают основание считать, что основным механизмом закрытия микропустот в первичном «рыхлом» поликристалле является дислокационно-дислокационный механизм переноса массы в виде пластических сдвигов и поворотов, снижающих общую потенциальную энергию системы.

В процессе слияния микрокристаллитов, как правило, наблюдались комбинированное движение дислокаций одновременно в нескольких пересекающихся системах скольжения, а также поворот отдельных фрагментов микрокристаллитов как целого на конечный угол, определяемый разориентацией кристаллических решеток в соседних зернах. Эти наблюдения можно рассматривать как подтверждение возможности проявления вращательных мод пластической деформации в кристаллах.

Рассмотренный механизм может служить прообразом механизма заживления микропор в реальных кристаллах при их отжиге и охлаждении.

Как показывают данные рис. 1, с, в конце процесса кристаллизации при температуре абсолютного нуля в модели сохраняется рыхлая структура с высокой концентрацией дефектов. На этом рисунке видны в большом количестве точечные дефекты (моновакансии A , бивакансии B и тройные вакансии C), более крупные объединения вакансий (субмикропоры D), неподвижные дислокации E , заблокированные, как правило, в ядре с вакансиями, а также дисклинационные центры F , в которых нарушена угловая симметрия ближнего окружения атомов.

О несовершенстве кристаллической структуры можно судить также на основании кривых распределения угла ориентации решетки в пространстве для пар соседних атомов. При этом, как показано на рис. 1, угол ориентации пар φ отсчитывался от горизонтальной оси Ox

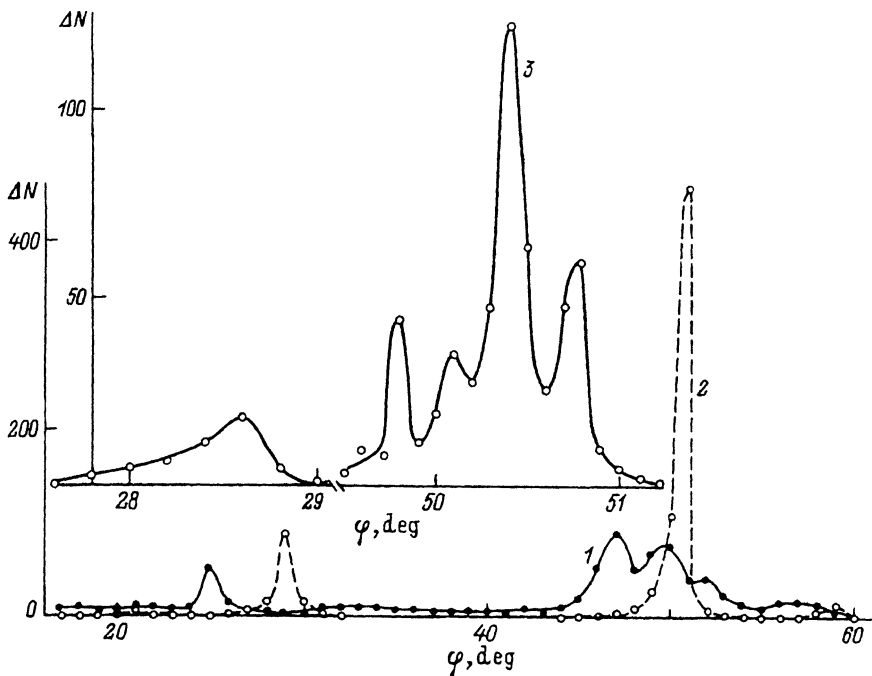


Рис. 2. Кривые распределения угла ориентации пар соседних атомов. 1 — для метастабильного состояния охлажденного образца на рис. 1, с. 2 и 3 — для бикристалла, показанного на рис. 1, d.

по часовой стрелке. На рис. 2 метастабильному «рыхлому» состоянию модели соответствует кривая 1. Она приведена лишь в интервале углов φ до 60° из-за периодичности, которая наблюдается в плотноупакованной треугольной решетке. Интервал φ со стороны малых углов обрезан углом 16° , поскольку в представленном образце не было микрорекристаллитов с такой ориентацией.

Из рис. 2 видно, что большей части атомов принадлежит достаточно размытая полоса в интервале углов от 45° до 54° , соответствующая нескольким микрорекристаллитам на рис. 1, с. Достаточно узкая полоса, соответствующая верхнему левому микрорекристаллиту на рис. 1, с, наблюдается при $\varphi = 25^\circ$.

Из-за высокой концентрации дефектов в полученном образце не удалось выявить четко очерченные границы зерен. Снизить концентрацию дефектов и смоделировать их залечивание с целью получения совершенных кристаллитов можно было путем длительной выдержки модели при температуре, установившейся после переходного процесса, либо путем нагрева исходной модели до более высоких температур с последующим ее охлаждением. Однако первый путь оказался неприемлемым из-за проведения длительных расчетов, а второй путь, хотя и приводил к некоторому снижению концентрации дефектов, также не позволял получать бездефектные кристаллиты без больших затрат машинного времени.

Для повышения вероятности получения совершенных кристаллитов в работе была осуществлена следующая методика. Модель образца с метастабильной структурой, полученной на первом этапе (рис. 1, с),

вновь подвергалась процедуре случайного вбрасывания атомов, применявшейся при начальном формировании аморфного образца. При этом атомы вбрасывались во внутреннюю область образца так, чтобы не нарушалась его внешняя граница. Эта процедура полностью уничтожала дефекты вакансионного типа. В результате полости, имеющиеся в модели, заполнялись атомами, после чего модель снова по той же методике охлаждалась до нулевой температуры.

После двукратного повторения указанных процедур и повышения числа атомов на 7.5% модель на рис. 1, *c* эволюционировала к виду, воспроизведенному на рис. 1, *d*. Распределение угла φ для этого состояния модели представлено кривыми 2 и 3 на рис. 2, при этом кривая 3 получена с повышенным на порядок разрешением по углу.

Сопоставляя рис 1, *c* и *d*, можно видеть, как в результате перестройки структуры в модели сформировался бикристалл с углом разориентации 22.8° , в котором каждый микрокристаллит обладал совершенной плотноупакованной треугольной решеткой, полностью лишенной вакансий и дислокаций. При этом вакансии, как отмечалось, сразу же исчезали при вбрасывании атомов, механизм же залечивания дислокаций более сложный. При уплотнении модели за счет заполнения внутренних полостей атомами последние попадали также и в «пустые» ядра дислокаций, что приводило к значительному повышению их подвижности и полному деблокированию. В результате перемещения в трех системах скольжения дислокации получали возможность легкого скольжения и выхода на свободную границу образца, что и наблюдалось в процессе охлаждения модели.

Наряду с элементарными актами перемещения дислокаций в модели наблюдались также и акты поворота отдельных фрагментов на конечный угол. В частности, микрокристаллит в левом верхнем углу на рис. 1, *c*, *d*, согласно данным рис. 2, повернулся на 4° , при этом его внешняя свободная граница осталась без изменений. Эти наблюдения подтверждают высказанный ранее вывод о роли вращательных мод пластической деформации в кристаллах.

На совершенство структуры микрокристаллитов в модели на рис. 1, *d*, особенно в случае малого кристаллита, имеющего очертания пятиугольника, указывают достаточно узкие линии в распределении угла φ . Так, в малом кристаллите ширина линии на половине ее высоты составляет 0.4° , а в случае большого кристаллита, полоса для которого имеет сверхтонкую структуру, общая ширина полосы составляет порядка одного градуса. Появление сверхтонкой структуры полосы, в которой явно выражены центральный пик при $\varphi = 50.4^\circ$ и две боковые линии, отстоящие от него на -0.6° и $+0.4^\circ$, свидетельствует о наличии в большом кристаллите слабого изгибного деформационного поля, вызванного несовершенным контактом в межкристаллитной границе, где, согласно рис. 1, *d*, выявляются заметные угловые отклонения от симметричного расположения атомов.

Следует отметить, что совершенный бикристалл, аналогичный показанному на рис. 1, *d*, возникает достаточно редко. Чаще двумерные стекла кристаллизуются в более сложные структуры с большим числом кристаллитов, о чем свидетельствуют данные рис. 3. На нем показан ряд структур, полученных при различных начальных распределениях атомов, которые возникали при разных псевдослучайных последовательностях координат атомов на этапе формирования аморфного образца. Кроме того, с большой степенью вероятности внутри

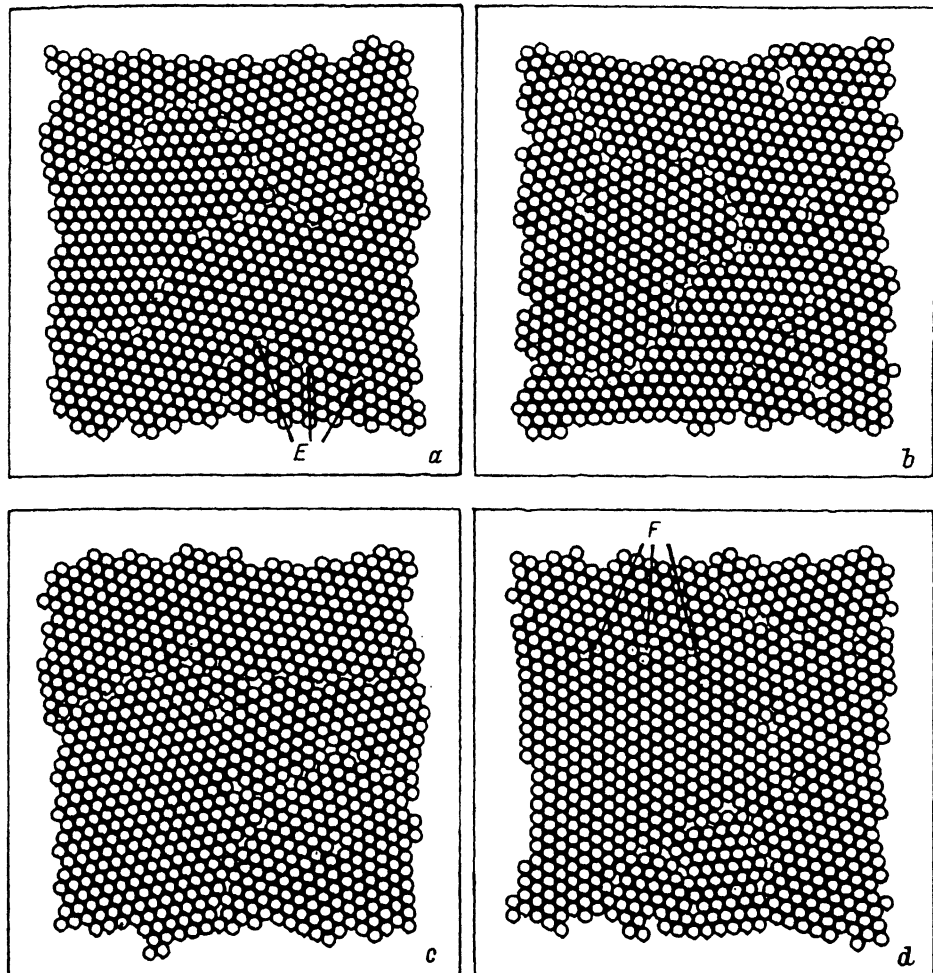


Рис. 3. Виды метастабильной структуры, полученные при разных начальных распределениях атомов.

Время стабилизации структуры t : a — 117.6, b — 123.7, c — 184.2, d — 133.3.

микросталлитов при нулевой температуре остаются дислокации, которые могут присутствовать как в виде одиночных дислокаций, так и в виде их скоплений.

Особый интерес вызывает наблюдение скоплений типа «дислокационной стенки», которая, как известно [11], была теоретически предсказана при выработке модели границы блоков с малоугловой разориентацией. Подобная стенка самоорганизовалась, в частности, и в случае, показанном на рис. 3, a в нижней части рисунка, где она образует границу, разделяющую блоки, разориентированные примерно на 14° . В этом случае экстраяды атомов (по аналогии с экстраплоскостями в кубической решетке), обрывающиеся на границе, подходят к ней под малыми углами и сами формируют границу. На рис. 3, a показаны ядра дислокаций E , образующие «стенку».

Иная структура границы блоков наблюдается, например, на рис. 3, *d*. Здесь также возникла стенка из трех дислокаций, обеспечивающая разориентацию соседних блоков на 11° , но в отличие от рис. 3, *a* экстраряды атомов в ней подходят к границе под большими углами. В этом случае за границу блоков можно принимать линию, связывающую ядра стеночных дислокаций, которые, по существу, являются дисклинационными центрами *F*. Нетрудно заметить, что при переходе через границу блоков прямолинейные ряды атомов испытывают локальный излом, являющийся следствием сильного искажения угловой симметрии окружения атомов в окрестности границы.

Обнаруженные в модельных экспериментах «дислокационные стенки» обеспечивали разориентацию решеток в соседних кристаллитах на $10-15^\circ$, что примерно в 3 раза превышает разориентацию, наблюдаемую на границе блоков в реальных материалах. Это несоответствие можно объяснить малыми размерами моделей, которые использовались в работе.

Таким образом, предложенная в настоящей работе методика позволяет моделировать поликристаллическую структуру твердых тел. В работе показано, как при охлаждении аморфных двумерных моделей происходит самопроизвольное образование кристаллитов с различной кристаллографической ориентацией.

Список литературы

- [1] Weiner J.H., Pear M.J. Appl. Phys. **46**, 6, 2398 (1975).
- [2] Ashurt W.T., Hoover W.G. Phys. Rev. **B14**, 4, 7465 (1976).
- [3] Esbjorn P.-O., Jensen E.J. J. Phys. Chem. Sol. **37**, 11, 1081 (1976).
- [4] Hoover W.G., Hoover N.E., Moss W.C. Phys. Lett. **A63**, 3, 324 (1977).
- [5] Ющенко В.С., Шукин Е.Д. ДАН СССР **242**, 3, 653 (1978).
- [6] Paskin A., Cohar A. Phys. Rev. Lett. **44**, 14, 940 (1980).
- [7] Говоров С.В., Иванов А.В., Мелькер А.И., Михайлин А.И. Пробл. прочности, **7**, 26 (1985).
- [8] Ющенко В.С., Шукин Е.Д. Физ.-хим. механика материалов, **3**, 54 (1987).
- [9] Лагунов В.А. В сб.: Моделирование на ЭВМ структурных дефектов в кристаллах. Л. (1988). С. 202.
- [10] Лагунов В.А. ФТТ **28**, 11, 3466 (1986).
- [11] Коттрелл А. Теория дислокаций. М. (1969). 96 с.