

fizikai szemle

2021/12

BEÁGYAZOTT KVANTUMPÖTTYÖK ÉS PLAZMONIKUS NANORÉSZECSKÉK LÉTREHOZÁSA ÖNSZERVEZŐDÉSSSEL

Jáger Gabriella, Tomán János, Erdélyi Zoltán
Debreceni Egyetem, Szilárdtest Fizikai Tanszék

A technológiai fejlődésből következő méretcsökkenés az elektronikai és a vegyi iparban szükségessé tette, hogy előre tudjuk jelezni, vagy meg tudjuk magyarázni a nanométeres skálán lezajló folyamatokat. Ezt teszik lehetővé a különböző atomisztikus modellek. A molekuladinamika mellett két gyakran használt megközelítés a kinetikus Monte-Carlo-módszer (KMC) és a kinetikus átlagtérmodell (KMF). Utóbbi két megkö-

zelítés között helyezkedik el a Debreceni Egyetem Szilárdtest Fizikai Tanszék és a Cherkasy Egyetem munkatársai által kifejlesztett sztochasztikus kinetikus modellezési keretrendszer (Stochastic Kinetic Modeling Framework, SKMF).

Az SKMF egy 2016-ban publikált [1], gyors, alacsony gépigényű¹ módszer, amely egy háromdimenziós kristályban az atomi rácshelyeken értelmezett összetételeket a megfelelő atomok megtalálási valószínűségeként értelmezi.² Legegyszerűbb esetben, sok KMC-módszerhez hasonlóan az SKMF is a legközelebbi szomszédok közötti kölcsönhatásokat veszi figyelembe, valamint sztochasztikus jellegű, viszont ebben az eljárásban a sztochaszticitás mértéke hangolható, és egyetlen SKMF-futtatás eredménye nagyszámú KMC-állapot átlagát adja. Az említett tulajdonságok következménye, hogy az SKMF egy közönséges számítógépen a modellezett rendszermérettől és időtartamtól függetlenül néhány perc, óra vagy nap alatt könnyen értelmezhető

A tanulmány alapjául szolgáló kutatást az Innovációs és Technológiai Minisztérium által meghirdetett Tématerületi Kiválósági Program (TKP2020-IKA-04) támogatta, és az Innovációs és Technológiai Minisztérium ÚNKP-20-3-I-DE-122 kódszámú Új Nemzeti Kiválóság Programjának a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Alapból finanszírozott szakmai támogatásával valósult meg (ösztöndíjas: J. G.).



Jáger Gabriella jelenleg PhD hallgató a Debreceni Egyetem Szilárdtest Fizikai Tanszékén. 2016 óta végez kutatómunkát Erdélyi Zoltán és Tomán János vezetése mellett. A szilárd testekben zajló diffúziós folyamatok tanulmányozása céljából szimulációs (SKMF) és kísérleti munkában is részt vesz. Jelenleg az Új Nemzeti Kiválóság Program ösztöndíjasa.

¹Nem igényel speciális hardvert, például szuperszámítógépet vagy videokártyát, a szimulációk futtatásához elegendő egy közönséges asztali számítógép vagy laptop.

²Ez egy átlagtérmodell, amely nem összekeverendő azzal, amelyben a rendszer összes részecskéjének hatását egy átlagos potenciáltérként veszik figyelembe, bár a két eljárás azonos eredményre vezet.

eredményt ad, ami nem igényel speciális statisztikai elemzést. Ezzel szemben a hagyományos Monte-Carlo-szimulációk esetén például a fázisok méretének, összetételének meghatározása statisztikai elemzést, sokszor sok különböző szimuláció futtatását igényli. Mivel az SKMF-ben az egyes rácshelyeken közvetlenül a megtalálási valószínűséget számoljuk, itt ez a plusz elemzési lépés szükségtelen. A diffúzió az SKMF jelenlegi verziójában kicserélődéses mechanizmussal valósul meg.³ A módszer további előnye, hogy algoritmusai könnyedén megérthető, így a <http://skmf.eu> honlapon elérhető, nyílt forráskód az adott kutatási területnek megfelelően módosítható.

A kinetikus Monte-Carlóval szemben ebben a módszerben az összetételüggő kölcsönhatási paraméterek használata egyszerűen implementálható. Ennek jelentősége abban rejlik, hogy a valódi fázisdiagramokhoz használt termodinamikai paraméterek általában a lokális összetételtől függenek. Amennyiben az anyagok kölcsönös oldékonysága nagy, akkor fázis-szeparált esetben – mint jelen cikkben a nanorészecskék és a mátrix rendszere –, a hagyományos atomisztikus módszerekkel rendkívül nehéz és számolásigényes a fázishatárok és fázisösszetételek meghatározása. Tehát az SKMF egy sokoldalú módszer, amely – többek között – lehetővé teszi az olyan atomisztikus folyamatok tanulmányozását is, mint a spinodális bomlás, a nukleáció és növekedés, az Ostwald-érés, vagy a vegyületfázisok kialakulása.

Ebben az írásban az SKMF-módszert arra használjuk, hogy jobban megértsük az alacsony energiájú ionokkal implantált minta hőkezelése során kialakuló kvantumpöttyök vagy plazmonikus nanorészecskék keletkezésének folyamatát.

³Bár a modellnek létezik vakanciamechanizmussal működő változata is, az egyrészt lényegesen lassabb, másrészt egyensúlyi vakanciakoncentrációt feltételezve ugyanazt az eredményt adja, mint a kicserélődéses mechanizmussal működő verzió.



Tomán János egyetemi adjunktus, okleveles anyagkutató. 2016 óta a Debreceni Egyetem Szilárdtest Fizikai Tanszékének munkatársa. Kutatásának gerincét a szilárd testekben lezajló atommozgási folyamatok különböző módszerekkel történő számítógépes szimulációja képezi. Tagja a háromdimenziós sztochasztikus kinetikus átlagtermómodell (SKMF) fejlesztőcsapatának.



Erdélyi Zoltán az MTA doktora, a Debreceni Egyetem Szilárdtest Fizikai Tanszékének tanszékvezető egyetemi tanára. PhD-fokozatot anyagtudományból Franciaországban, fizikából a Debreceni Egyetemen szerzett. Több európai és egy japán egyetemen volt vendégprofesszor, vendégkutató. Főbb kutatási területe az atommozgási folyamatokkal összefüggő jelenségek kísérleti és elméleti vizsgálata. Munkásságát Selényi Pál-díjjal ismerték el.

Az alacsony energiájú ionokkal történő implantálás során egy hordozóra növesztett, vékony, szigetelő, jellemzően valamilyen oxidréteg felületét keV nagyságrendbe eső energiájú fém- vagy félvezetőionokkal bombázzák, amelyek maximum néhány tíz nanométeres mélységig hatolnak. Az implantációs folyamat sokféle eredménnyel járhat, függően a választott anyagoktól, az ionenergiától, az iondózistól, az ionáramtól és a hordozóhőmérséklettől stb., emiatt ipari alkalmazások szempontjából igen rugalmas technikának számít, amelyek közül sok egy energetikailag hatékonyabb jövőt céloz meg. A leggyakrabban vizsgált rendszerek közül sok olyan mátrix- és implantáltanyag-párokat használ, amelyek fázisszeparálódóak, azaz a keverékben energetikailag kedvezőbb az azonos atomok közötti kötések kialakítása. Ezért az implantált ionok elkülönülő nanorészecskékként válnak ki a szigetelő vékonyrétegben az implantációs folyamat, vagy az azt követő hőkezelés során. Az így létrehozott, szigetelő oxidba ágyazott, félvezető vagy vezető nanorészecskék ígéretes nanokompozitok lehetnek a nemfelejtő memóriák, egyelektron-tranzisztorok, fotonikai eszközök, hatékonyabb fotovoltikus eszközök, vagy katalitikus felületek kifejlesztése céljából.

A továbbiakban azt az esetet tárgyaljuk, amikor az implantációs folyamat egy túltelített szilárd oldatot eredményez, amelyben az anyag szeparációjához további hőkezelés szükséges.

Amennyiben az implantált anyag félvezető, akkor a kialakuló, nagyon kicsi, sokszor csak néhány nanométeres nanorészecskéket gyakran illetik a kvantumpötty névvel. Ezt az elnevezést annak az érdekes tulajdonságuknak köszönhetik, hogy diszkrét energianívókkal rendelkeznek, mint holmi mesterséges atomok. Tulajdonságaik ebben a tekintetben a makroszkopikus méretű félvezetők és az önálló atomok között helyezkednek el.

Amennyiben az implantált anyag valamilyen fém, akkor a kiváló nanorészecskék plazmonikus tulajdonságait lehet kiaknázni. Lokalizált felületiplazmoszcillációknak nevezzük a nanoméretű fém objektumok és szigetelők határfelületén elektromágneses gerjesztés hatására kialakuló kollektív elektronoszcillációkat [2].

A kétalkotós reguláris szilárd oldatok klasszikus elméleti leírásából tudjuk, hogy a fázisszeparációs tartományt két altartományra szokás osztani (1. ábra). Az egyik a nukleáció és növekedés tartományának elkeresztelt metastabil tartomány, ahol akkor tud megindulni az implantált anyag kiválása, ha a rendszerben a termikus fluktuációk hatására kialakul egy kritikus méretnél nagyobb inhomogenitás, azaz elegendő implantált atom keveredik egymás mellé ahhoz, hogy stabil nukleuszt alkotva további növekedése a rendszer számára energetikailag előnyös legyen. A másik tartomány a spinodális bomlás instabil tartománya, ahol sokkal kisebb fluktuáció is az anyagok gyors szétválását okozza, és egy karakterisztikus távolsággal rendelkező mintázat formájában szeparálódik a kisebbségben lévő implantált anyag. Bár mindkét me-

chanizmus az implantált- és mátrixanyagok szeparációját okozza, a kialakult mintázat igen eltérő lehet. A szakirodalomban a spinodális bomlást általában a címlapon⁴ látható folytonos, hosszúkas, labirintusszerű mintázattal azonosítják, nem elkülönülő nanorészecskékkal.

Ebből kifolyólag az ionimplantációról szóló irodalomban a fázisszeparálódó rendszerekben lezajló nanorészecske-keletkezést gyakorlatilag mindig a nukleáció és növekedés folyamatához kötik. A spinodális bomlás lehetősége szinte fel sem merül, még annak ellenére sem, hogy a használt anyagok gyakran rendkívül alacsony oldékonysággal rendelkeznek egymásban, azaz az implantált anyag mennyisége a minta valamely részében könnyen a spinodális bomlás tartományában lehet.

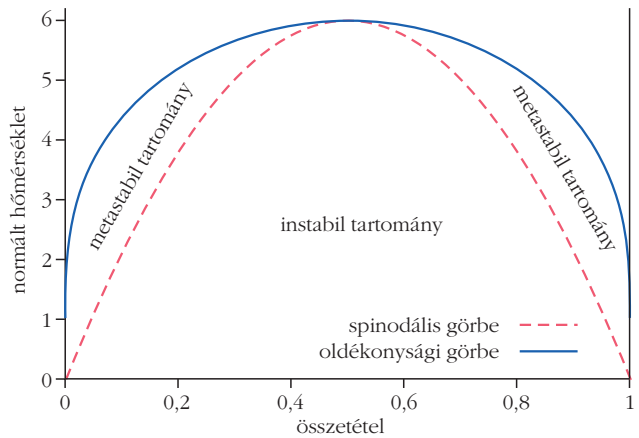
Az SKMF-en alapuló számítógépes szimulációink lehetőséget adnak a spinodális bomlás szerepének tisztázására a hőkezelés során történő nanorészecske-keletkezésben. Ezáltal választ kaphatunk arra a kérdésre, hogy az implantált, kis oldékonysággal rendelkező, fázisszeparálódó rendszerekben képes-e a spinodális bomlás elkülönülő nanorészecskéket létrehozni, annak ellenére, hogy az ionimplantációs szakirodalom lényegében figyelmen kívül hagyja ezt a lehetőséget. Ennek jelentősége abban rejlik, hogy a spinodális bomlással létrejött szerkezetek jól meghatározott modulációs hullámhosszal rendelkeznek, és így a folyamat az önszerveződés egyik legkönnyebben megvalósítható formájának tekinthető. A legtöbb alkalmazásban, ahol beágyazott nanorészecskéket használnak, az egyenletes térbeli eloszlás előnyös lehet a teljesítmény szempontjából.

Az SKMF-modell alapegyenletei, paraméterei

A fenti problémához használt számítógépes modell az eredeti (2016-os) SKMF-modell továbbfejlesztett változata, amely a 2021-ben publikált, már háromdimenziós objektumokban lezajló atomisztikus folyamatok modellezésére is alkalmas 3DO-SKMF [4] modell elődje.⁵

Az eredeti SKMF-modellhez hasonlóan, x és y irányban periodikus határfeltételeket alkalmazunk, de z irányban véges a rendszer: felül a környezetével (E „Environment”) áll kapcsolatban, alul egy hordozóhoz (S „Substrate”) van kötve.⁶

A modellben egy rögzített háromdimenziós rácsot definiálunk, amelyen c_i betöltési valószínűségeket számítunk – ezek annak valószínűségét adják meg, hogy egy adott i -edik rácshelyet egy implantált A



1. ábra. Az oldékonysági és a spinodális görbe.

atom foglal el. Következésképpen, egy kétalkotós rendszerben, annak a valószínűsége, hogy egy i -edik rácshelyet egy B mátrixatom foglal el, $1-c_i$.

A c időbeli változását az i . rácshelyen a megtalálási valószínűségek $J_{i,j}$ ki- és $J_{j,i}$ befolyó áramainak összege határozza meg, amelyeket az i -edik rácshely és annak p_i darab legközelebbi szomszédos j . rácshelye között vesszünk figyelembe. Az anyagmegmaradás értelmében:

$$\frac{dc_i}{dt} = - \sum_{j=1}^{p_i} (J_{i,j} - J_{j,i}). \quad (1)$$

A modellben a sztochaszticitás az áram additív taggal való bővítésével valósult meg, így a megtalálási valószínűségek teljes árama két rácshely között:

$$J_{i,j} = J_{i,j}^{\text{MF}} + \delta J_{i,j}^{\text{Lang}} = c_i(1-c_j)\Gamma_{i,j}^{\text{MF}} + \delta J_{i,j}^{\text{Lang}}, \quad (2)$$

ahol $J_{i,j}^{\text{MF}}$ az átlagtérmodell által jósolt áram, a $\delta J_{i,j}^{\text{Lang}}$ pedig a dinamikus Langevin-zaj, amelynek szerepét több publikáció is részletesen tárgyalja [1, 5, 6]. E zaj feladata, hogy biztosítsa a termikus fluktuációkat a rendszerben, tehát lehetőséget adjon arra, hogy például egy fázisszeparálódó rendszerben elegendő mennyiségű oldott anyag gyűljön egy helyre, hogy kritikus méretű nukleust létrehozva növekedhessen tovább a kiválás.

$J_{i,j}^{\text{MF}}$ az A atomok betöltési valószínűségének árama az i -edik rácshelyről a j -edik rácshelyre, és persze vissza irányba a B atomok betöltési valószínűségének árama (mintha az A komponens az i -edik rácshelyről a j -edik rácshelyre folyna, a B komponens pedig fordítva). Átlagtér-közelítésben a $\Gamma_{i,j}^{\text{MF}}$ a betöltési valószínűségek kicserélődési frekvenciája az i -edik és j -edik rácshely között⁷

$$\Gamma_{i,j}^{\text{MF}} = v \exp\left(-\frac{Q_{i,j}}{kT}\right) = v \exp\left(-\frac{2E_0 - E_{i,j}}{kT}\right), \quad (3)$$

⁷Arrhenius-típusú hőmérsékletfüggést mutat, hasonlóan a kicserélődési mechanizmussal működő KMC-ban a i -edik rácshelyen levő A atom és j -edik rácshelyen levő B atom kicserélődési valószínűségéhez.

⁴A cikkben lévő ábrákhoz az SKMF-módszerrel számolt eredmények keresztmetszeti és 3D-s vizualizációját az OVITO szoftverrel készítettük [3].

⁵A modell legtöbb aspektusát itt nem használjuk, de az egyenleteket teljes alakjukban prezentáljuk.

⁶Az ezek által szolgáltatott határfelületek nagyon fontosak lehetnek alkalmazás szempontjából, de tárgyalásuk túlmutat jelen cikk keretein.

ahol ν a próbálkozási frekvencia, $Q_{i,j}$ a kicserélődések aktivációs energiája, k a Boltzmann-állandó, T az abszolút hőmérséklet, E_0 a nyeregponti energia és $E_{i,j}$ az i -edik és j -edik rácshelyek kölcsönhatási energiáinak összege. A kölcsönhatási energia az egy adott rácshelyen (valamekkora valószínűséggel) levő atom és annak legközelebbi szomszédjai közötti párkölcsönhatási energiák összegeként definiálható. Tehát egy h -adik (i -edik vagy j -edik) rácshelyen lévő X (A vagy B) atom kölcsönhatási energiája:

$$E_b^X = \sum_{l=1}^{p_h} c_l V_{AX} + \sum_{l=1}^{p_h} (1-c_l) V_{XB} + e_h V_{XE} + s_h V_{XS}, \quad (4)$$

ahol feltesszük, hogy az adott rácshely első koordinációs héja $Z = p_h + e_h + s_h$ rácshelyet tartalmaz, ahol Z a használt rács koordinációs száma (egy rácshely legközelebbi szomszédainak száma), p_h a h -adik rácshely kötéseinek száma a rendszeren belül, e_h a h -adik rácshelyen lévő A atom és a környezet között létesített kötések száma, míg s_h a h -adik rácshelyen lévő A atom és a mátrix alatti hordozó között létesített kötések száma. A mintán belül keletkezett kötésekre annak a valószínűsége, hogy az egy szomszédos l -edik rácshelyen egy A vagy B atom helyezkedik el, c_l illetve $1-c_l$. A hordozót és a környezetet is tisztának tekintjük, a rendszer A és B anyagával csak kémiai kölcsönhatást létesítenek, bármilyen anyagtranszport nélkül. V_{AA} , V_{BB} és V_{AB} az A - A , B - B és A - B párkölcsönhatási energiák, míg V_{AS} és V_{BS} a hordozó és az A és B anyagok közötti párkölcsönhatási energiákat jelöli. V_{AE} és V_{BE} ugyanezeket jelöli a környezetre vonatkozóan.

Némi algebra után felírható, hogy

$$E_i^A + E_j^B = (M-V) \sum_{in=1}^{p_i} c_{in} + (M+V) \sum_{jn=1}^{p_j} c_{jn} + 2Z\varepsilon_0 + \frac{1}{2}V(p_i - p_j) + \varepsilon_E(e_i + e_j) + \varepsilon_S(s_i + s_j) + \sigma_E(e_i - e_j) + \sigma_S(s_i - s_j), \quad (5)$$

ahol az in és jn indexek az i -edik és j -edik rácshelyek szomszédait jelölik a szimulált térfogaton belül (ebbe nem tartoznak bele a környezet és a hordozó „rácshelyei”).

A kapott kifejezésben a modell kinetikai és termodinamikai tulajdonságait leíró, makroszkopikus mérésekből vagy ab initio szimulációkból megbecsülhető tényleges bemeneti paraméterek szerepelnek, amelyek mind kifejezhetők a párkölcsönhatási energiák segítségével:

- az E_0 -val és ν -vel együtt a minta belsejében az atomugrások alapfrekvenciáját szabályozó ε_0 paraméter

$$\varepsilon_0 = \frac{V_{AB} + V_{BB}}{2}, \quad (6)$$

- a minta-környezet és minta-hordozó határfelületeken érvényes ugrási frekvenciákat meghatározó ε_E és ε_S paraméterek

$$\varepsilon_E = \frac{V_{AE} + V_{BE}}{2} - \varepsilon_0 \quad (7)$$

és

$$\varepsilon_S = \frac{V_{AS} + V_{BS}}{2} - \varepsilon_0, \quad (8)$$

- a kölcsönös diffúziós együttható összetételfüggetlenségét hordozó M paraméter

$$M = \frac{V_{AA} - V_{BB}}{2}, \quad (9)$$

- a szegregációs tendenciákat meghatározó σ_E és σ_S paraméterek

$$\sigma_E = \frac{V_{AE} - V_{BE}}{2} - M \quad (10)$$

és

$$\sigma_S = \frac{V_{AS} - V_{BS}}{2} - M, \quad (11)$$

- a tömbi rendszer termodinamikai viselkedését leíró V reguláris szilárdoldat-paraméter

$$V = V_{AB} - \frac{V_{AA} + V_{BB}}{2}. \quad (12)$$

Velőjelétől függ, hogy a rendszer mely kötések kialakítását preferálja:

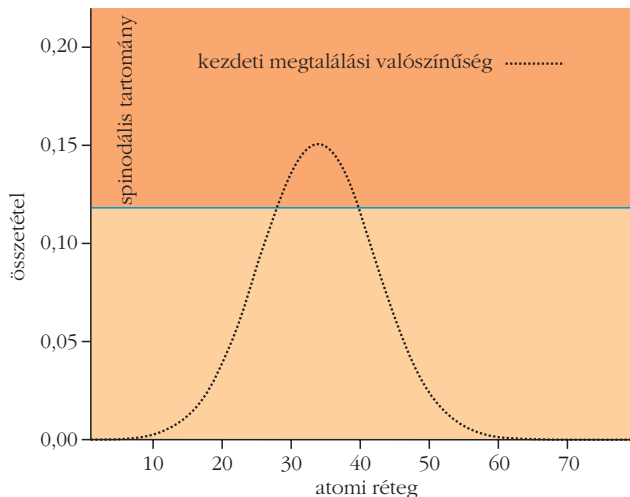
- rendeződő rendszerekben $V < 0$: az A - B kötések kialakítását preferálja a rendszer;
- ideális rendszerekben $V = 0$: nem számít, hogy A - A , B - B vagy A - B kötések vannak jelen;
- fáziszeparálódó rendszerekben $V > 0$: az A - A és B - B kötések kialakítását preferálja a rendszer.

Továbbiakban minden paraméter értékét 0-ra állítjuk, csak a V paraméter kap pozitív értéket, hogy fáziszeparálódó rendszert modellezhessünk.

Implantáció utáni hőkezelés számítógépes szimulációi

Számításainkban a rendszer termodinamikai viselkedésének jellemzésére a $V/(kT) = 0,4$ értéket választottuk, amely azt jelenti, hogy az oldékonysági határok $c_{eq} \approx 0,0089$ és $c_{eq} \approx 0,9911$. Tehát a vizsgált hőmérsékleten az anyagok termodinamikai egyensúlyban kevesebb mint 1%-ig oldódnak egymásban. A spinodális tartomány határai $c_{sp} \approx 0,118$ és $0,882$.

Mivel az ionimplantáció jelenleg is széles körben használt és jövőbeli alkalmazások szempontjából még mindig ígéretes technológia, sokféle módszer is létezik az implantált anyag eloszlásának kiszámolására.



2. ábra. Implantált A atomok Gauss-eloszlást követő összetételprofilja.

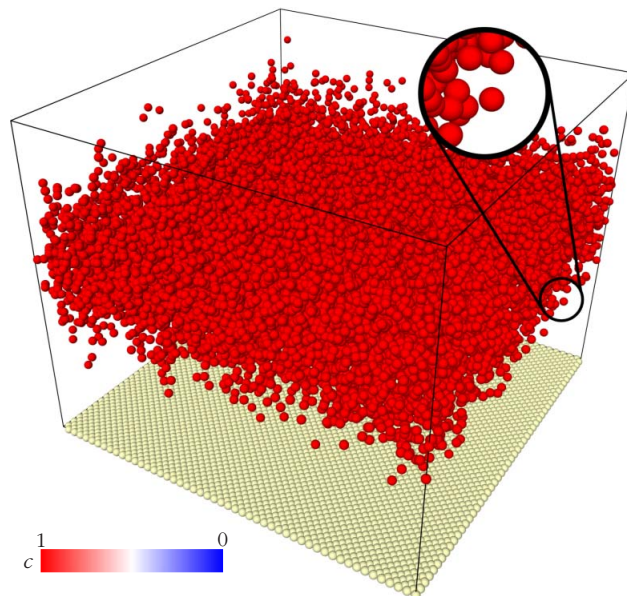
Az implantált anyag valódi eloszlásának kiszámításához figyelembe kell venni az ionnyaláb minta felületén okozott porlasztó hatását, az implantált ionok kölcsönhatását, a minta megvastagodását a többletanyag besugárzása által, valamint az ionnyaláb keverő hatását minta-hordozó határfelületnél. Az egyszerűség kedvéért itt egy egydimenziós Gauss-eloszlást veszünk a szimulációk bemeneteként, amely igen jó első közelítés. A görbe paramétereit úgy választottuk, hogy az implantált A atomok maximális összetétele a spinodális bomlás tartományába essen (2. ábra). Ezt a bemeneti összetételprofilát értelmezzük az A atom megtalálási valószínűségeként az adott síkokon.

Mint említettük, a V paraméteren kívül minden paraméter értéke 0. Ez azt jelenti, hogy szimulációinkban a zajt, amely alapfeltétele lenne a nukleációs folyamat megvalósulásának, szintén teljesen kikapcsoltuk. Így lehetőségünk nyílik szeparáltan vizsgálni a spinodális bomlás hatását.⁸

A hőkezelési szimulációt kétféle kezdőállapottal is megvalósítottuk, amelyeket 3. és 4. ábrákon jelenítünk meg. A képeken a kinagyított részek az összetételek vizualizációjának módját hivatottak szemléltetni. A rácshelyeken megjelenő kis gömbök sugara az implantált A atomok megtalálási valószínűségével skálázódik, és ezzel együtt a színe is változik az ábra melletti színskála szerint.

a) Az egyik kezdőállapot az úgynevezett „atomisztikus kiindulás” (3. ábra), amelyben a rácshelyeken csak 1 vagy 0 szerepelhet, mint ahogy a valós rendszerekben is csak A és B atomok vannak. Minden rácshelyen a bemeneti összetételprofilnak megfelelő valószínűséggel generálunk A atomokat. Ezen véletlenszerűség miatt viszont elméletileg fennáll annak lehetősége, hogy annyi A atomot generálunk egymás mellé, amely már a hőkezelési szimuláció legelején a kritikus érték feletti mérettel rendelkezik, teret engedve ezzel a nukleáció és növekedés folyamatának.

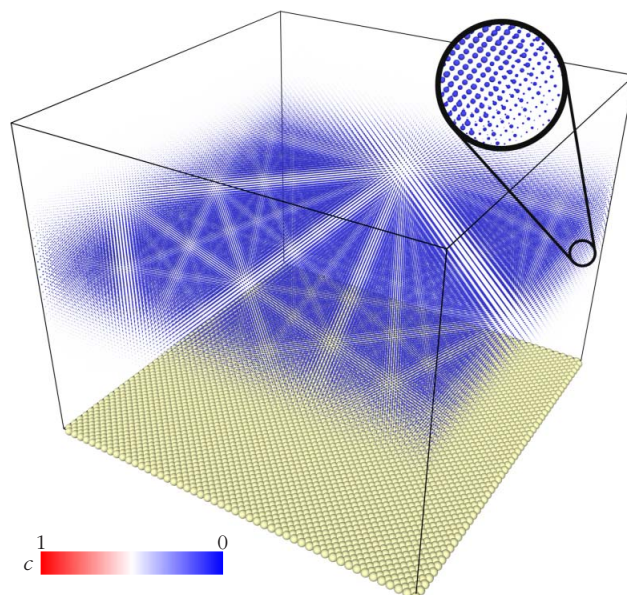
⁸Természetesen egy valós rendszerben van termális fluktuációk okozta zaj is.

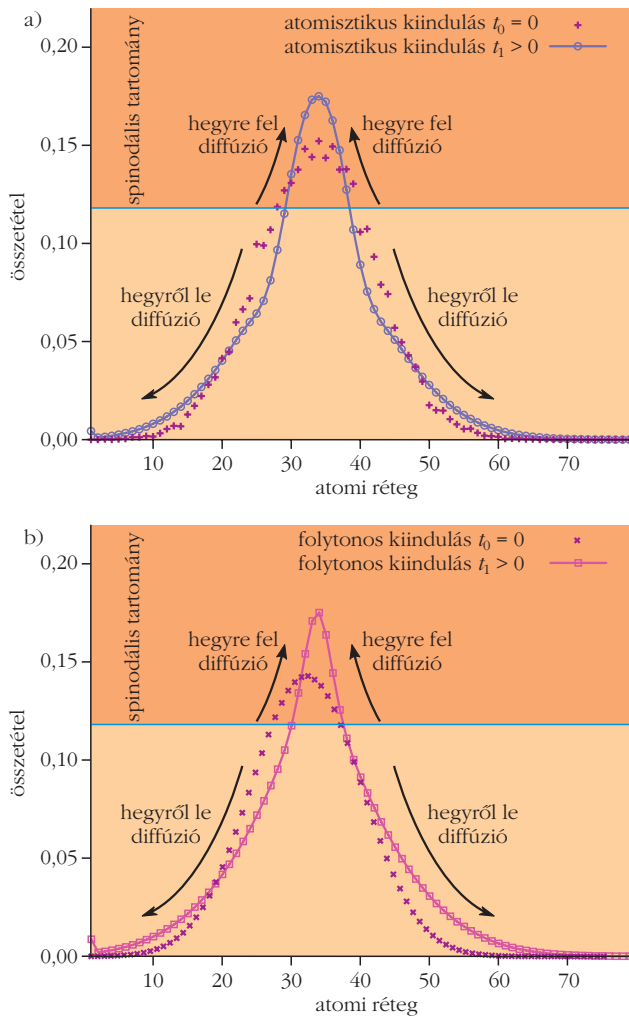


3. ábra. A szimuláció kezdeti állapota „atomisztikus kiindulás” esetén. A rácshelyeken érvényes megtalálási valószínűségek az implantált A atomok esetén $c = 1$, B mátrixatomok esetén $c = 0$. A felnagyított részlet az egyéni implantált atomok láthatóságát segíti. A világos színű réteg a hordozót képviseli.

b) Ebből kifolyólag futtattunk szimulációt az úgynevezett „folytonos kiindulással” is (4. ábra), amelyben kihasználtuk a modell még egy praktikus tulajdonságát, és a szimulációt közvetlenül a kezdeti megtalálási valószínűségekkkel kezdtük, ahelyett, hogy az implantált atomokat véletlenszerűen elosztottuk volna. E kezdőállapotban az egyes rácshelyeken lévő rácshelyek 5%-os bizonytalansággal a bemeneti profil által kijelölt 0 és 1 közötti értékeket vehetik fel, amely

4. ábra. A szimuláció kezdeti állapota „folytonos kiindulás” esetén. Az egyes rácshelyeken a c megtalálási valószínűség az implantált A atomok kezdeti összetételprofiljának megfelelően változik 5% relatív egyenletes bizonytalansággal. Itt, illetve a további ábrákon a megtalálási valószínűségeket a c -vel lineárisan változó sugarú gömbök reprezentálják. Lásd a felnagyított részletet.





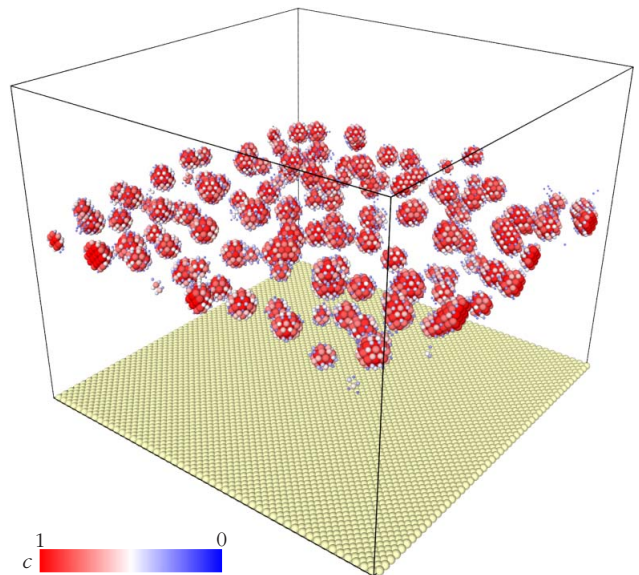
5. ábra. Az összetételprofilok időbeli változása a hőkezelések szimulációja során, a fő diffúziós irányokkal, a) „atomisztikus kiindulás” és b) „folytonos kiindulás”.

ekvivalens az atomisztikus eset nagyszámú regenerálásának átlagával. Itt azonban teljesen biztosak lehetünk benne, hogy a rendszer nem tartalmaz kritikus méretű nukleuszt, így itt – zaj hiányában – a fáziszeperáció csak és kizárólag a spinodális bomlás eredménye lehet.

Ha az a) szimuláció hasonló változásokon megy keresztül, mint a b) szimuláció, akkor kellő biztossággal megállapíthatjuk, hogy abban is spinodális bomlás következett be. Ez pedig természetesen azt jelenti, hogy ez a folyamat biztosan fontos szerepet játszik akkor is, amikor termikus fluktuációk vannak a rendszerben.

Szimulációs eredmények tárgyalása

A megtalálási valószínűség eloszlásokat (5. ábra) megtekintve látható, hogy mindkét esetben hasonló a kezdeti eloszlás (+ és × pontsorok), illetve egy későbbi (t_1) időpillanatbeli állapotot tekintve szintén nagyon hasonló profilokat ○ és □ pontsorok) kaptunk. Ez azt jelenti, hogy mindkét rendszer ugyanazon a változáson ment keresztül, nevezetesen:



6. ábra. Szimulációs eredmények három dimenzióban: az ionimplantált mintában spinodális bomlás útján nanorészecskék képződnek.

- a spinodális határon kívül „hegyről le” diffúzió történik, tehát a szokásos, összetételgradienssel ellentétes irányú anyagáram jön létre, a Gauss-eloszlás „szétfolyik”,
- a spinodális határon belül (a kezdeti eloszlás csúcsa körül) viszont úgynevezett „hegyre fel” diffúzió történik, azaz az anyag az összetételgradienssel megegyező irányba folyik, összegyűlik az implantált anyag, a Gauss-eloszlás csúcsa egyre magasabb lesz.

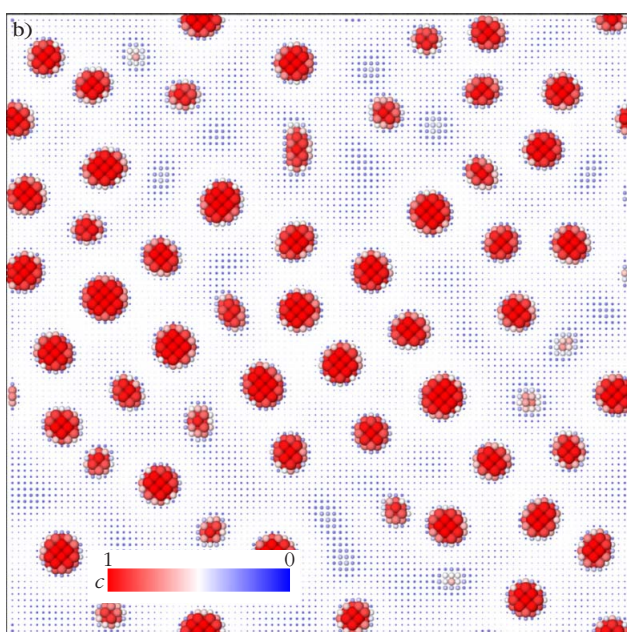
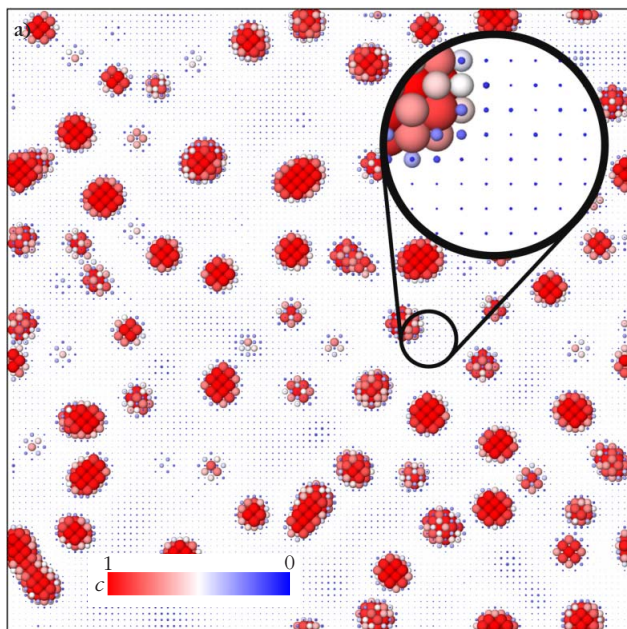
A rendszert három dimenzióban tekintve (6. ábra) látható, hogy elkülönülő nanorészecskék jöttek létre, és a folytonos kiindulással végzett számolás is bizonyítja, hogy ezért a spinodális bomlás felelős.

A kezdeti eloszlás maximumánál készült metszeti képeket felülnézetben megtekintve (7. ábra) látható, hogy a kialakuló részecskék közötti távolság viszonylag homogén, amelynek értékét a spinodális bomlás leggyorsabban növekvő hullámhossza határozza meg. A látszólag kisebb részecskesűrűség az atomisztikus kiindulás esetében annak köszönhető, hogy mivel kezdetben az implantált atomok nem egyenletesen helyezkedtek el, függőleges irányban a kiválások szórása nagyobb, így az ábrán mutatott atomsíkok alatt vagy fölött helyezkednek el. Ez a hatás az összetételprofilokon is megfigyelhető, az atomisztikus kezdeti állapot esetében a csúcs kevésbé élesedik ki.

Összefoglalás és kitekintés

Az SKMF egy viszonylag új, költséghatékony atomi skálájú technika, amely a rácshelyeken értelmezett atomtörteket a megfelelő atomok megtalálási valószínűségként értelmezi.

Az SKMF-módszer továbbfejlesztett változata segítségével lehetőségünk nyílt az ionimplantált minták hőkezelése során lejátszódó atommozgási folyamatok



7. ábra. A hőkezelési szimulációk során kialakult részecskék sűrűségét demonstráló síkmetszeti képek. Ezek a besugárzási maximum körüli pár atomi sík vastagságú szeletek. A nanorészecskék a spinodális bomlás során előálló lokális maximumok helyén alakulnak ki. A részecskék között megfigyelhető karakterisztikus távolság a spinodális bomlás leggyorsabban növekvő hullámhosszának felel meg, a) „atomisztikus kiindulás” és b) „folytonos kiindulás”.

tanulmányozására. Rugalmas tulajdonságainak köszönhetően a modell nagyon hasznos eszköznél bizonyult arra, hogy megértsük az ionimplantáció utáni nanorészecske-keletkezést.

Annak ellenére, hogy a spinodális bomlás nagyon elhanyagolt téma az ionimplantációval történő beágyazott részecskék előállítására vonatkozó szakirodalomban, a modell segítségével lehetőségünk nyílt megmutatni, hogy a nanorészecskék keletkezését irányító folyamat gyakran lehet a spinodális bomlás az általában feltételezett nukleáció és növekedés helyett.

Szimulációinkat zaj (sztochaszticitás) nélkül futtatuk, hogy külön tudjuk vizsgálni a spinodális bomlás szerepét a nanorészecske-keletkezésben. Azonban egy reális rendszerben természetesen jelen vannak termális fluktuációk, amelyek beindíthatják a nukleációs folyamat általi nanorészecske-képződést is. Mivel sok kísérleti anyagrendszerben az oldékonyságok nagyon alacsonyak, és emiatt az implantációs összetételmaximumok nagyon gyakran a spinodális tartományba eshetnek, elképzelhető, hogy a nukleáció és növekedés, valamint a spinodális bomlás folyamata egyaránt részt vesz a nanorészecskék keletkezésében.

Meg kell jegyeznünk, hogy bár ebben a munkában csak legközelebbi szomszédok közötti kölcsönhatásokat és fázisszeperálódó tendenciát veszünk figyelembe, a modell nem korlátozódik csak ezekre. Figyelembe vehetünk további kölcsönhatási héjakat és kémiai rendeződést [7], vagy akár n -test potenciálokat. Továbbá, a rácshelyeken értelmezett megtalálási valószínűségek folytonos természetének köszönhetően összeteltől függő kölcsönhatási energiák is könnyedén implementálhatók [8] és a módszer kényelmesen használható a többskálájú szimulációk atomi skálájú tagjaként [9]. Ezen kívül, sztochaszticitás (zaj) nélkül a modell egyensúlyi állapotok, például Janus-nanorészecskék háromdimenziós fázisdiagramjainak kiszámítására is hasznos [10].

Irodalom

- Zoltán Erdélyi, Mykola Pasichnyy, Volodymyr Bezpalchuk, János J. Tomán, Bence Gajdics, Andriy M. Gusak: Stochastic Kinetic Mean-Field model. *Computer Physics Communications* 204 (2016) 31–37.
- Kroó Norbert: Fényes új világ: egy új típusú fény és alkalmazásai. *Fizikai Szemle* 57 (2007) 37, <http://fizikaiszemle.hu/archivum/fsz0702/kroo0702.html>
- Alexander Stukowski: Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO – the Open Visualization Tool. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering* 18 (2010) 015012.
- Bence Gajdics, János J. Tomán, Zoltán Erdélyi: An effective method to calculate atomic movements in 3D objects with tuneable stochasticity (3DO-SKMF). *Computer Physics Communications* 258 (2021) 107609.
- Tetyana V. Zaporozhets, Andriy Taranovskyy, Gabriella Jáger, Andriy M. Gusak, Zoltán Erdélyi, János J. Tomán: The effect of introducing stochasticity to kinetic mean-field calculations: Comparison with lattice kinetic Monte Carlo in case of regular solid solutions. *Computational Materials Science* 171 (2020) 109251.
- Andriy M. Gusak and Tetiana Zaporozhets: Martin’s Kinetic Mean-Field Model Revisited – Frequency Noise Approach versus Monte Carlo. *Metallfizika I Noveishie Tekhnologii* 40 (2018) 1415–1435.
- Andriy Gusak, Tetiana Zaporozhets, Nadiia Storozhuk: Phase competition in solid-state reactive diffusion revisited – Stochastic Kinetic Mean-Field approach. *The Journal of Chemical Physics* 150/17 (2019) 174109.
- Bence Gajdics, János J. Tomán, Zoltán Erdélyi: Composition dependent gradient energy coefficient: How the asymmetric miscibility gap affects spinodal decomposition in Ag-Cu? *CALPHAD* 67 (2019) 101665.
- Bence Gajdics, János J. Tomán, Helena Zapolsky, Zoltán Erdélyi, Gilles Demange: A multiscale procedure based on the stochastic kinetic mean field and the phase-field models for coarsening. *Journal of Applied Physics* 126/6 (2019) 065106.
- Andriy Taranovskyy, János J. Tomán, Bence D. Gajdics, Zoltán Erdélyi: 3D phase diagrams and the thermal stability of two-component Janus nanoparticles: effects of size, average composition and temperature. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 23 (2021) 6116–6127.