

体材料结晶能力的理论预测^{*}

叶祥熙¹⁾ 明 辰¹⁾ 胡蕴成²⁾ 宁西京^{1)†}

1) 复旦大学现代物理研究所 教育部应用离子束物理重点实验室, 上海 200433)

2) 东方汽轮机有限公司, 德阳 618000)

(2008 年 9 月 6 日收到 2008 年 10 月 20 日收到修改稿)

引入评价晶体材料缺陷的残缺度及描述晶面表面势场的结晶势两个概念, 针对 Ni, Cu, Al, Ar 单质在不同温度条件下的再结晶过程进行了大量的分子动力学模拟, 发现残缺度随结晶势的增大而单调地减小, 即结晶势越大则形成单晶体能力越强. 由于结晶势能够唯一地确定结晶能力并且其计算简单, 因此可从理论上快速方便地预测材料形成单晶体的能力.

关键词: 单晶, 结晶, 分子动力学, 材料设计

PACC: 6150C, 7115Q

1. 引 言

体材料的物理化学特性不仅依赖于材料的化学组分, 而且显著地取决于体材料的原子分子构型. 单质碳元素材料可以是无定形碳结构, 可以是石墨、金刚石晶体, 也可以是 C₆₀ 分子晶体, 它们表现出完全不同的力学、光学、电学特性. 相同化学组分的单晶体与多晶体也表现出显著不同的特性. 一般来说, 单晶体具有明显优越的力、热、光、电、磁特性^[1-5]. 例如, 镍基高温合金, 单晶材料比多晶材料的蠕变寿命长约一个数量级^[3]; 导电金属材料 Cu, Al 的单晶体具有更小的电阻率; 单晶 ZnO 材料具有蓝到紫外的发光能力, 并可用于制作高功率耐高温晶体管^[4]. 因此, 长期以来人们在理论及工艺方面一直进行着不懈的努力以期制备体积更大、结构更完美的单晶材料^[6,7].

不同材料形成单晶体的能力有很大差异. 石英在一般条件下便可形成线径为数十厘米的单晶体, 而在各种极端条件(包括采用 2000℃ 高温和 10⁹ Pa 高压)下所能制备的金刚石晶体也只有毫米量级线径^[1,8,9]. 所以在材料设计, 特别是新材料的预测过程中, 不仅需要考虑材料的结构及性能, 还应预测其形成晶体的能力. 以氮化碳材料为例, 十几年前理论工作预测其 α -、 β - 及 c - 相晶体具有与金刚石相当

的硬度^[10,11]. 然而到目前为止, 利用各种技术所能制备的最大晶粒不超过几十微米^[12,13]. 如果能够从理论上预测其结晶能力与石英相近, 那将更有力地促进有关的实验探讨. 相反, 如果理论预测其结晶能力比金刚石还差, 仅从经济角度考虑, 便没有必要从实验上探讨相关的制备技术.

研究晶体的生长过程, 预测材料的缺陷、多晶及枝晶结构的形成都是理论工作者一直感兴趣的课题. 人们已经发现这些结构与不同晶面的生长速度密切相关^[14,15]. 然而实际测量晶体的生长速度却很困难, 不同的工作组采用类似的测量方法可能给出相差一个数量级的测量结果^[16]. 最近人们采用分子动力学方法对晶体生长过程进行了大量的研究^[15], 虽然该方法最多只能模拟包含数百万个原子的微观体系, 但已能够定量地给出结晶过程中有关固液面发展速度的两个重要特性参数^[15], 即界面自由能^[17-20]及动力学系数^[14,21-25], 由这两个参数作为输入参数, 采用相场模型能够很好地描述宏观的枝晶生长过程^[15,26]. 2006 年文献 [27] 成功地应用相场模型描写了 Zn-Al 二元合金的枝晶结构, 显示了该模型广泛的应用前景. 由于相场模型能够描述宏观晶体生长过程, 故其能够预测给定生长条件下材料形成单晶体的可能性, 也可以对不同材料(化学组分不同)在普通生长条件下形成单晶体的能力进行评价.

^{*} 国家自然科学基金(批准号:10574030)和上海市重点学科建设项目(批准号:B107)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: xjning@fudan.edu.cn

然而,该模型必须以界面自由能和动力学系数为输入参数,而这两个参数的确定需要进行大量且精细的分子动力学模拟^[15],加之相场模型自身涉及巨大的三维计算量,使得该模型难以快速方便地评价材料形成单晶体的能力。

本文试图寻找一种简单准确的评价材料形成单晶体能力的理论方法.首先定义了残缺度概念,用以定量描述新生长晶体偏离完美单晶体结构的程度.在大量分子动力学模拟的基础上,发现残缺度与生长晶面附近的势场有密切关系,继而引入结晶势概念用以描述晶面势场,最后表明残缺度随结晶势的减小而单调递减.虽然在本工作中只采用经验势函数进行探讨,但因为晶体生长的动力学模拟与晶面势场的计算都采用相同的势函数,故而所得结论应与经验势本身是否准确没有直接关系.有意义的是,结晶势的计算简单,利用常规从头计算方法即可获得,故本文方法可以快速准确地评价材料形成单晶体的能力。

2. 基本思想与理论模型

2.1. 残缺度

一个单晶体的形成过程,无论是从一个晶核开始生长,还是在籽晶面上再结晶,都是各个晶面的外延发展过程.因此评价材料形成单晶体的能力只需考察在各个完整的晶面上新生长层的完整程度即可.如果新生长层中存在大量缺陷,它们将在后续的生长过程中被不断放大,以致破坏单晶体的生长而形成多晶或枝晶.新生长层越接近完美晶格结构,标志着该材料形成单晶体的能力越强。

为了描述新生长晶体与完美晶体结构的区别,我们定义残缺度

$$C = (E_0 - E)E_0, \quad (1)$$

其中, E 为新生长晶体在 0 K 时的总势能(静态势能),当新生长晶体的缺陷增多时,体系的静态势能增大,即 E 值增大; E_0 为相同数量的原子构成完美晶格结构时在 0 K 时的总势能(静态势能).这里之所以比较 0 K 时的总势能,是因为残缺度反映的是新生长晶体结构偏离完美单晶体结构的程度, 0 K 时的总势能完全由晶体的构型所决定,没有温度所引起的势能涨落.残缺度 C 是一与体系原子数无关的量, C 值越小,晶体的结构越趋于完美,表示材料形成单晶的能力越强。

2.2. 晶体生长模型的建立

残缺度的计算需要进行大量晶体生长模拟,为此建立如下的分子动力学模型:预先构造一个具有完美晶格结构的籽晶层(见图 1(a)),其下端与一热库接触,使在模拟中籽晶层保持在一固定温度点,上端可外延生长.采用该模型进行外延生长模拟,以考察新生长层的残缺度.为了比较各种不同材料的形成单晶体的能力,应尽可能多地采用各种不同的相互作用势.考虑到计算量的因素,分子动力学模型包含的原子数应尽可能少,但又能反映出不同材料,不同晶面的生长特性。

我们用一个简化的正则系综(系统温度保持恒定)来模拟晶体生长过程,具体研究对象为 Ni, Cu, Al, Ar 的 (111) (100) (110) 面在不同生长温度环境下的外延生长.构造的固液面模型如图 1 所示.以 Ni (111) 面为例,固态部分(籽晶层)由 7 层原子组成,每层 225 个 Ni 原子按 15×15 方式以 3.523 \AA 晶

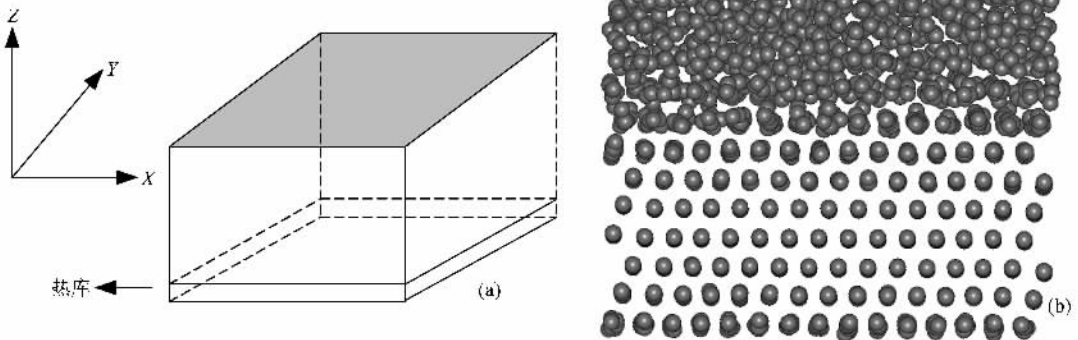


图 1 分子动力学模型示意图 (a)基本结构 (b) (111) 晶面的外延生长

格常数完美地排列于 $f_{cc}(111)$ 面；液态熔体部分由 1125 个原子组成，整个体系的 2700 个原子在两维方向上 (x, y) 采用周期性边界条件。关于模拟其他晶面生长的模型与图 1(b) 相似，具体参数见表 1。

表 1 模型的具体参数

晶面	边界	层原子排列	固态层数	熔体原子数	总原子数
(111)	2D(x, y)	1515	7	1125	2700
(110)	2D(x, y)	1515	7	1125	2700
(100)	2D(x, y)	1010	7	1000	2400

为了模拟热力学的弛豫过程，使系统温度保持恒定，籽晶最底层与一个温度为 T 的热库相接触。根据 Riley 和 Coltrin 的工作^[28]，籽晶层原子与热库原子的碰撞使得最底层的某个原子 i 的速度 v_i^{old} 改变为

$$v_i^{new} = (1 - \theta)^{1/2} v_i^{old} + \theta^{1/2} v_i^T(\xi), \quad (2)$$

$(i = x, y, z),$

其中 θ 为 0—1 之间的一个参数； $v_i^T(\xi)$ 代表从 Maxwellian 速度分布(温度为 T)中随机选取的速度分量。在模拟中，每隔 1 fs， θ 取为在 0—1 之间的一个随机数，并从最底层任意选取原子按(2)式给速度重新赋值。

如前所述，选取何种势函数对预期所得到的普适关系没有直接影响，但为使本模型更贴近实际，我们选用能够较好地描述 fcc 过渡金属 Ni, Cu, Al 原子间的相互作用的 Tight-binding(TB)势^[29]。N-atom 体系的 TB 势可以写成

$$E^i = E_B^i + E_R^i, \quad (3)$$

其中

$$E_B^i = - \left\{ \sum_j \xi^2 e^{-2(\xi r_{ij}/r_0 - 1)} \right\}^{1/2}, \quad (4)$$

$$E_R^i = \sum_j A e^{-\kappa(r_{ij}/r_0 - 1)}. \quad (5)$$

这里的(4)(5)两式分别描述了原子之间的相互吸引势和排斥势。其中 r_{ij} 代表第 i 个原子和第 j 个原子间的距离， r_0 是晶体中原子间第一近邻距离， ξ 是一个有效的跳跃步长。对于 Cu, Ni, Al 原子，相应的参数列于表 2 中。

表 2 原子间相互作用势 TB 势^[29]的相应参数

元素	A/eV	ζ /eV	p	q	$r_0/\text{\AA}$	$a_0/\text{\AA}$
Cu	0.0855	1.224	10.960	2.278	2.557	3.615
Al	0.1221	1.316	8.612	2.516	2.864	4.050
Ni	0.0376	1.070	16.999	1.189	2.492	3.523

显然，由于 TB 势参数的明显差异，Cu, Al, Ni 体系对应于三种不同的作用势体系。为了使模拟结果更具普适性，我们采用作用势形式完全不同的 L-J 势对 Ar 的结晶过程也进行了研究。L-J 势的具体形式为

$$V(r_{ij}) = 4\epsilon \left(\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right), \quad (6)$$

式中参数取为^[30] $\epsilon/k_B = 119.8 \text{ K}$, $\sigma = 3.41 \text{ \AA}$ 。

2.3. 晶体生长模拟细节

在模拟固液面的发展之前，首先制备处于熔融状态的熔体原子。具体方法是，保持籽晶层中的原子在完美晶格位上固定不动，而熔体原子状态由完整的晶格原子在高于熔点的温度(对于 Ni, Cu, Al 温度取 2500 K，对于 Ar 温度取 80 K)下弛豫得到(需 10 ps)，其混乱程度如图 1(b)所示。之后，使 7 层籽晶在某一温度 T (对应于具体的生长温度)下进行弛豫直到平衡(需 5 ps)，然后每隔 1 fs 从籽晶最底层

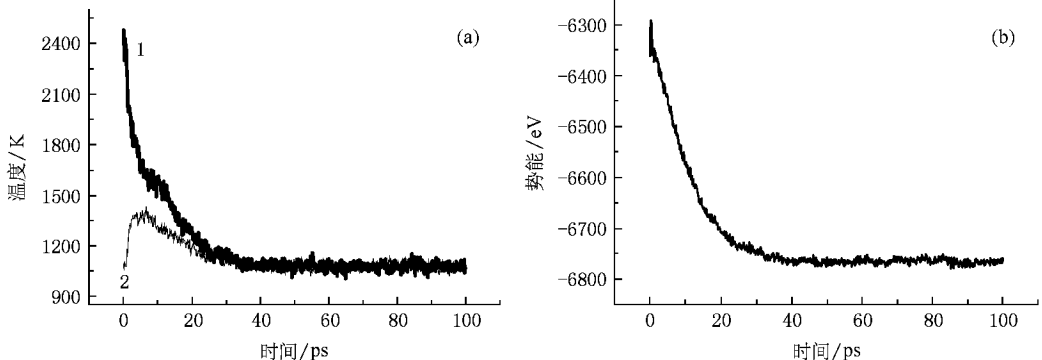


图 2 生长温度 1000 K, Ni(111) 面生长过程的温度变化曲线(a)及体系势能变化曲线(b)。(a)中曲线 1 和曲线 2 分别表示熔体及基体(籽晶)的温度曲线)

选取 10 个原子根据 (2) 式进行速度恢复^[31], 使得整个体系保持在温度 T . 在整个动力学演化过程中, 体系的温度以及势能变化类似于如图 2 所示曲线. 100 ps 演化之后, 整个体系趋于平衡, 晶体生长结束. 这时使用阻尼轨线的方法 (a damped trajectory method)^[32,33] 使体系温度降低到 0.01 K 以下, 然后计算得到体系的势能 E (静态势能).

计算完美单晶在相同生长温度 T 下的静态势能 E_0 的具体方法是, 以 Ni(111) 为例, 将同样数目的 2700 个原子以 15×15 方式排列于 fcc(111) 表面上, 共 12 层, 并在两维方向上 (x, y) 采用周期性边界条件. 然后体系在温度 T 下弛豫, 其间每 1 fs 在体系内任意选取 10 个原子进行速度恢复. 经过 50 ps 的演化之后, 采用与上述计算静态势能 E 相同的方法计算体系的静态势能 E_0 .

2.4. 模型的合理性

在我们的分子动力学模型中 (111) 及 (110) 体系包含 2700 个原子, 而 (100) 体系包含 2400 个原子, 均为 12 个原子层. 由于固液面的过渡层约为 10^{-9} m, 即 3—5 个原子层^[15], 12 个原子层应能够反映固液面的主要特征. 从模拟的结果来看, 模型已能给出满意的结果. 以 Ni 的 (111) 和 (100) 晶面生长为例, 大量模拟结果显示, 在同样的生长温度下 (100) 面新生长层的完整程度明显优于 (111) 面上的新生长层 (比较图 3(a) 和 (b)). 大量模拟还表明, Ar 元素的结晶能力远低于 Ni 元素. 在 Ar(111) 晶面的生长层中, 除存在更多的点缺陷外, 还出现螺旋扭曲 (螺旋错), 如图 3(c) 所示. 这种扭曲在形式上类似于在实际晶体生长过程中出现的螺旋状台阶^[34].

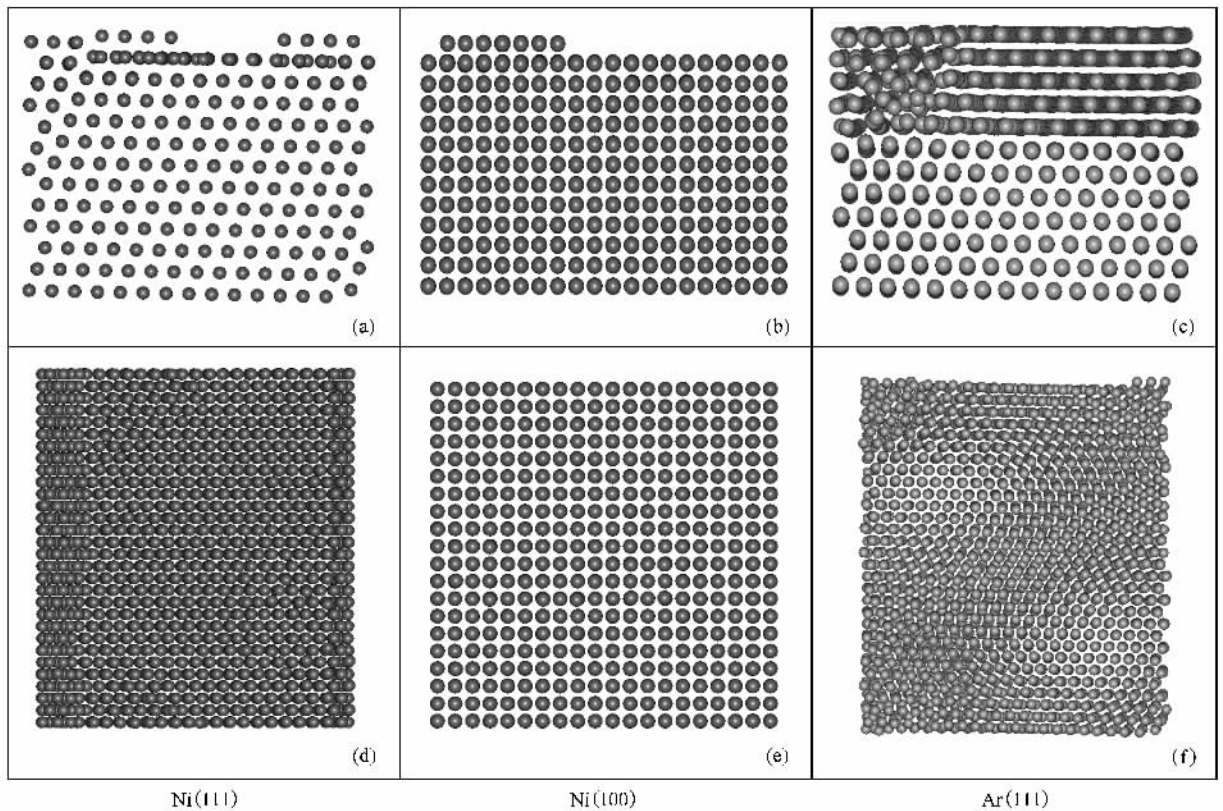


图 3 生长温度 900 K, Ni(111) 面生长完成后的构型 (a) 侧视图 (d) 俯视图; 同样温度, Ni(100) 面生长完成后的构型 (b) 侧视图 (e) 俯视图; 生长温度 10 K, Ar(111) 面生长完成后的构型 (c) 侧视图 (f) 俯视图

3. 结果与讨论

3.1. 熔点温度 T_m

在下面的讨论中将用到各种材料的熔点温度 T_m , 因此我们使用过热-过冷滞回线方法 (superheating-supercooling hysteresis method) 计算了 Ni, Cu, Al, Ar 体系的熔点^[35]. 以 Ni 体系为例, 具体操作过程: 首先赋予体系 1300 K 的初温. 在随后的动力学演化过程中, 每隔 1 fs 任意选取体系内 10 个原子进行速度重置((1) 式中 $T = 1300$ K). 待体系的势能达到平衡后(约需 100 ps), 记录体系势能. 然后温度每升高 100 K, 重复上述过程. 温度升至 2000 K 之后, 开始降温至 700 K 结束. 在每个温度点的弛豫与升温过程相同. 计算结果如图 4 所示, 图中 T_+ 表示过热和过冷的温度极限, 而 T_m 则是平衡熔点. 熔点 T_m 可以用 $T_m = T_+ + T_- - \sqrt{T_+ T_-}$ 推导得

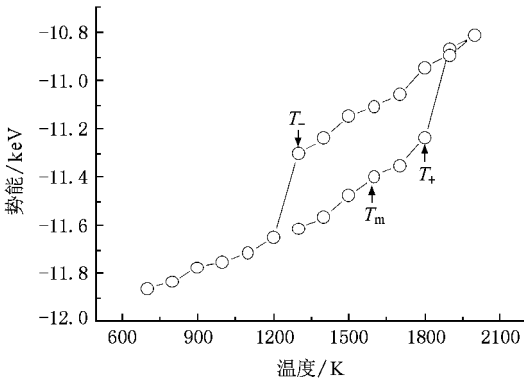


图 4 Ni 原子体系的过热-过冷势能-温度回线

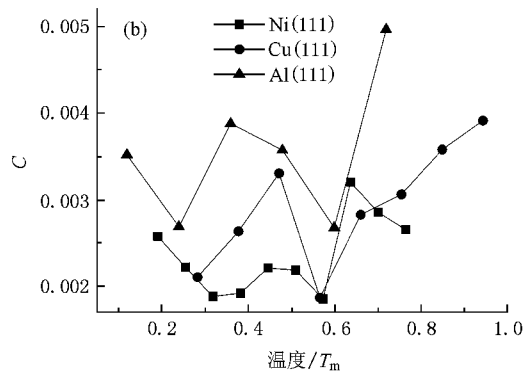
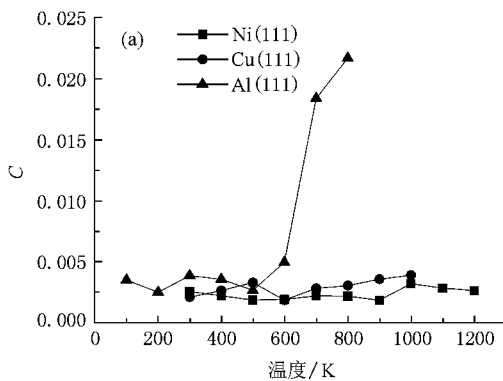


图 5 Ni, Cu, Al(111) 面外延晶体的残缺度 C 与基体绝对温度 T (a) 和相对温度 (b) 的关系

到^[35]. 对于我们的模型, Ni 的 $T_+ = 1800 \pm 50$ K, $T_- = 1300 \pm 50$ K, 则 $T_m = 1570 \pm 75$ K, 略低于 Ni 的熔点实验值 1726 K, 这是由于模型只使用二维边界, 而不是三维边界, 存在表面效应所导致的. 结果同样也证明模型及 TB 势基本能够描写 Ni 的热力学演化过程. 运用同样的方法得到 Cu 的熔点为 1060 ± 75 K, Al 为 834 ± 75 K, Ar 为 66 ± 5 K.

3.2. 残缺度的计算与讨论

为了计算 Ni, Cu, Al 三种材料的(111)面在不同生长温度(籽晶温度)下的残缺度, 我们在各自熔点以下约十个温度点分别模拟了相应的生长过程. 在每一个温度点进行 16 次生长模拟, 由此求出各个温度下残缺度的平均值(图 5(a)). 如果将温度值用各自熔点温度 T_m 约化, 则得到图 5(b)所示的 $C-T$ 曲线. 由图 5(b)可见, 虽然三种晶体的残缺度随温度起伏变化, 但在很宽的温度区间(0.3—0.7 T_m), Ni(111) 结晶能力总体上讲最强(C 值最小), Cu(111) 面次之, Al(111) 面最差. 有趣的是, 三个体系结晶的最佳温度都约为 0.6 T_m . 因此在本文中仅限于探讨 0.6 T_m 温度下残缺度 C 与生长晶面势场的关系.

采用上文所述方法, 我们在 0.6 T_m 温度点附近分别统计计算了 Ni, Cu, Al, Ar 的(111)(100)(110)面的残缺度, 见表 3. 图 6 显示四种材料的残缺度与晶面指数的关系, 显然同种材料(110)和(100)面具有大致相同的残缺度, 且明显小于(111)面的残缺度. 但是, 在不同材料之间的残缺度比较, 则不存在这种关系. 例如 Al(110)(100)面的残缺度明显大于其他三种材料的(111)面的残缺度.

表 3 Ni, Cu, Al, Ar (111)(100)(110)面在接近 $0.6T_m$ 生长的
 残缺度 C 表中的每一个数据皆由 16 个数据统计平均得到

温度/K	材料与晶面	E/eV	E_0/eV	残缺度 C
600 ($0.573T_m$)	Cu(111)	-9353.03	-9374.78	0.00232
	Cu(100)	-8282.55	-8295.01	0.00150
	Cu(110)	-9187.28	-9199.68	0.00135
900 ($0.566T_m$)	Ni(111)	-12136.9	-12163.20	0.00216
	Ni(100)	-10742.7	-10744.90	0.00020
	Ni(110)	-11819.8	-11823.00	0.00027
500 ($0.599T_m$)	Al(111)	-8840.31	-8865.05	0.00279
	Al(100)	-7835.71	-7848.83	0.00167
	Al(110)	-8710.99	-8726.36	0.00176
40 ($0.606T_m$)	Ar(111)	-214.710	-217.30	0.01191
	Ar(100)	-191.076	-191.91	0.00434
	Ar(110)	-206.118	-207.98	0.00894

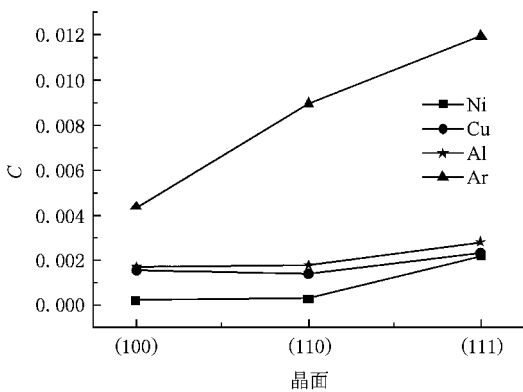


图 6 在接近 $0.6T_m$ 下 Cu, Al, Ni, Ar (111)(100)(110)生长晶体的
 残缺度 C

3.3. 结晶势

我们认为, 残缺度与生长晶面的势场密切相关. 考虑熔体原子被一个表面吸附的过程, 这些原子沿垂直于表面的方向接近该表面可能“感受”到一个势谷 P_x (图 7), 在表面上沿某一方向移动时可能“感受”到另一势谷. 两个势谷底的坐标即是完美晶格点的坐标. 根据玻尔兹曼分布, 两个势谷越深, 被吸附原子处于格点的概率应越大, 有利于形成完美晶格结构. 如果沿任一方向的势谷深度为零, 则在该方向不能形成有序结构, 即不能形成晶体. 也就是说, P_z

与 P_s 的乘积越大, 残缺度 C 应越小, 形成单晶体的能力越强. 因此, 我们把 P_z 与 P_s 的乘积定义为结晶势 P , 即 $P = P_z \cdot P_s$. 应当注意的是, P 应是生长温度 T 的函数, 因为不同温度对应不同的晶格常数. 我们具体的计算结果也证实了这一点(见下文).

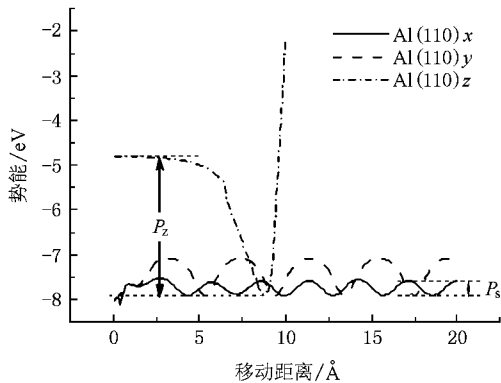


图 7 Al(110)面沿 x, y, z 方向的势能曲线

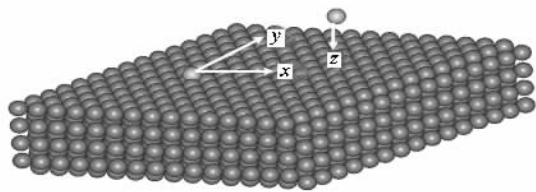


图 8 (110)扫势示意图

根据以上分析, 我们对四种材料的不同晶面进行了势扫描, 即计算单原子在完美晶面附近沿 x, y, z 三个方向所感受到的势场(图 8). 以 x 方向为例, 使表面上一个单原子沿 x 方向移动, 每移动 0.1 \AA , 将该原子在 x 方向上的速度置零, 并让其在 y, z 方向弛豫, 直到原子找到最低势能点为止. 沿 y 方向的扫势方法相同, 而沿 z 方向的扫描过程也类似, 只是单原子从表面上方 10 \AA 处开始逐步接近表面. 考虑到熔体原子在固液界面横向迁移时, 将优先选取势谷较浅(势垒较低)的方向(类似于水桶定律), 而沿表面原子最密排方向的势谷最浅, 故此我们将 x 或 y 轴设置为原子的最密排方向. 图 7 是单个 Al 原子在 Al 完美晶体的(110)面附近沿三个方向感受到的势曲线. 原子在 x 方向感受到的势谷深度可能不同于沿 y 方向的势谷深度. 在计算结晶势 P 时选取 x, y 方向势谷值较小的 P_s . 根据上述方法, 分别计算了 Ni, Cu, Al, Ar 不同晶面的结晶势 $P(T = 0.6T_m)$, 见表 4. 根据表 3 A 可得到 $C-P$ 曲线(图 9).

表 4 Ni, Cu, Al, Ar 在接近 $0.6T_m$ 温度下的 P_s, P_z, P

温度/K	材料与晶面	P_s/eV	P_z/eV	结晶势 P/eV^2
600 ($0.573T_m$)	Cu(111)	0.105	2.680	0.28209
	Cu(100)	0.459	2.427	1.11369
	Cu(110)	0.469	3.218	1.50768
900 ($0.566T_m$)	Ni(111)	0.116	3.704	0.42966
	Ni(001)	0.422	4.210	1.77727
	Ni(110)	0.536	4.179	2.23984
500 ($0.599T_m$)	Al(111)	0.072	2.630	0.18989
	Al(100)	0.414	2.431	1.00651
	Al(110)	0.321	3.096	0.99239
40 ($0.606T_m$)	Al(111)	0.004	0.051	0.00023
	Al(100)	0.017	0.058	0.00100
	Al(110)	0.037	0.070	0.00258

势. 由于 $P_{600} < P_{700} < P_{800} < P_{900}$, 故根据图 9 可知, 当生长温度高于 $0.6T_m$, Cu(111) 面结晶能力随生长温度升高而降低, 对应的残缺度依次增长. 我们在这些温度点进行的生长模拟给出的残缺度 C (表 5) 与 $C-P$ 曲线给出的预测完全符合.

表 5 Cu(111) 在不同温度下的 C 与 P 值

材料与晶面	温度/K	残缺度 C	结晶势 P/eV^2
Cu(111)	600	0.00232	0.282089
	700	0.00283	0.204508
	800	0.00306	0.201057
	900	0.00358	0.199146

4. 结 论

基于大量的分子动力学模拟, 本文工作表明利用结晶势能够很好地评价材料形成单晶体的能力. 由于结晶势的计算比较简单, 采用各种从头计算方法即可得到各种材料在各种温度条件下的结晶势, 由我们得到的 $C-P$ 曲线便可知其结晶能力如何. 在此基础上可建立实验评价体系, 即实际测量一些常规材料(例如 Cu, Ni, SiO_2) 在一定条件下生长的单晶体的残缺度(可用位错程度代替), 同时精确计算同样条件下(可借助量子力学从头计算方法)材料的结晶势, 由此得到标准的 $C-P$ 曲线. 关于新材料结晶能力的预测, 只需计算其结晶势便可由标准 $C-P$ 曲线得知其结晶能力与标准 $C-P$ 曲线涉及的常规材料结晶能力的差别. 与相场模型相比, 本文提出的方法不需要得知界面自由能与动力学系数, 因此即使不能获得原子之间相互作用势的解析表达, 采用量子力学从头计算方法便可求得结晶势, 从而对材料形成单晶体的能力作出快速准确的评价. 本文方法不仅可以预测单质材料的结晶能力, 还有望推广至多元材料(如合金)形成单晶体能力的预测.

作者衷心感谢李郁芬、王炎森、承焕生、庄军、赵利教授, 在最困难的时候, 他们最有力地支持鼓励本工作. 感谢复旦大学国家高性能计算中心, 大部分计算是由其提供平台完成的.

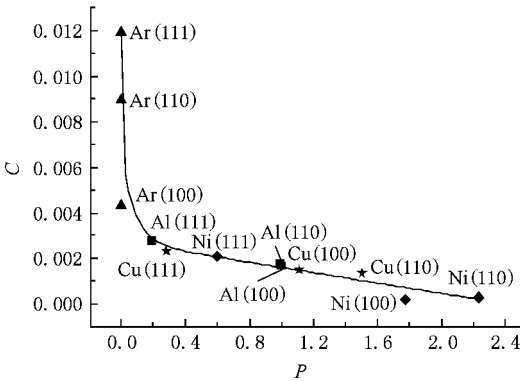


图 9 约为 $0.6T_m$ 下, Ni, Cu, Al, Ar 的(111)(110)(100)残缺度 C 与结晶势 P 的关系

$C-P$ 曲线表明, 残缺度随结晶势增大而按指数规律递减, 即结晶势越大则形成单晶体能力越强. 这一单调递减规律具有十分重要的意义. 对于任何化学组分不同的材料, 不论结晶是在哪一温度下进行的, 只要计算出相应的结晶势 P , 便能够从 $C-P$ 曲线(图 9)查知该材料在该温度下的结晶能力如何. 以 Cu(111) 面在 700, 800, 900 K 温度下的生长为例, 相对应的结晶势 P 值(表 5)都小于 600 K 时的结晶



- [1] Li Y D ,Qian Y T ,Liao H W ,Ding Y ,Yang L ,Xu C Y ,Li F Q ,Zhou G 1998 *Science* **281** 246
- [2] Kumar K ,Ramamoorthy K ,Chandramohan R ,Sankaranarayanan K 2006 *Cryst. Res. Technol.* **41** 217
- [3] Seth B B 2000 *Superalloys-The Utility Gas Turbine Perspective ,9th International Symposium on Superalloys (Seven Springs , Pennsylvania : Warrendale TMS)* p3-16
- [4] Look D C 2001 *Mat Sci Eng B-Solid* **80** 383
- [5] Service R F 1997 *Science* **275** 1878
- [6] Scheel H J ,Fukuda T 2003 *Crystal Growth Technology* (Chichester : John Wiley & Sons) p1
- [7] Laudise R A 1970 *The Growth of Single Crystals* (New York : Prentice-Hall)
- [8] Isberg J ,Hammersberg J ,Johansson E ,Wikstrom T ,Twitchen D J , Whitehead A J ,Coe S E ,Scarsbrook G A 2002 *Science* **297** 1670
- [9] Lou Z S ,Chen Q W ,Zhang Y F ,Wang W ,Qian Y T 2003 *J. Am. Chem. Soc.* **125** 9302
- [10] Liu A Y ,Cohen M L 1989 *Science* **245** 841
- [11] Teter D M ,Hemley R J 1996 *Science* **271** 53
- [12] Kundoo S ,Saha P ,Chattopadhyay K K 2006 *Advances in Applied Ceramics* **105** 73
- [13] Jiang J C ,Cheng W J ,Zhang Y ,Lan M B ,Zhu H S ,Shen D Z 2007 *Mater. Lett.* **61** 2243
- [14] Bragard J ,Karma A ,Lee Y H ,Plapp M 2002 *Interface Sci.* **10** 121
- [15] Hoyt J J ,Asta M ,Karma A 2003 *Mater. Sci. Eng. R* **41** 121
- [16] Mullin J W 2001 *Crystallization* (Oxford : Butterworth-Heinemann) p403
- [17] Davidchack R L ,Laird B B 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 4751
- [18] Hoyt J J ,Asta M ,Karma A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 5530
- [19] Morris J R ,Lu Z Y ,Ye Y Y ,Ho K M 2002 *Interface Sci.* **10** 143
- [20] Apte P A ,Zeng X C 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 221903
- [21] Sun D Y ,Asta M ,Hoyt J J 2004 *Phys. Rev. B* **69** 024108
- [22] Briels W J ,Tepper H L 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 5074
- [23] Hoyt J J ,Sadigh B ,Asta M ,Foiles S M 1999 *Acta Mater.* **47** 3181
- [24] Amini M ,Laird B B 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 216102
- [25] Becker C A ,Olmsted D ,Asta M ,Hoyt J J ,Foiles S M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 125701
- [26] Rappaz M ,Kurz W 1995 *Nature* **375** 103
- [27] Haxhimali T ,Karma A ,Gonzales F ,Rappaz M 2006 *Nat. Mater.* **5** 660
- [28] Riley M E ,Coltrin M E ,Diestler D J 1988 *J. Chem. Phys.* **88** 5934
- [29] Cleri F ,Rosato V 1993 *Phys. Rev. B* **48** 22
- [30] Allen M P ,Tildesley D J 1987 *Computer Simulation of Liquids* (Oxford : Clarendon Press) p21
- [31] Gong X F ,Wang L ,Ning X J ,Zhuang J 2004 *Surf. Sci.* **553** 181
- [32] Zhang Q ,Buch V 1990 *J. Chem. Phys.* **92** 5004
- [33] Raff L M 1991 *J. Chem. Phys.* **95** 8901
- [34] Mullin J W 2001 *Crystallization* (Oxford : Butterworth-Heinemann) p221
- [35] Zheng L Q ,An Q ,Xie Y ,Sun Z H ,Luo S N 2007 *J. Chem. Phys.* **127** 164503

Theoretical prediction of the ability for bulk materials to form single crystals^{*}

Ye Xiang-Xi¹⁾ Ming Chen¹⁾ Hu Yun-Cheng²⁾ Ning Xi-Jing^{1)†}

¹⁾ *Applied Ion Beam Physics Laboratory, Key Laboratory of the Ministry of Education, Institute of Modern Physics, Fudan University, Shanghai 200433, China*

²⁾ *Dongfang Steam Turbine Works, Deyang 618000, China*

(Received 6 September 2008 ; revised manuscript received 20 October 2008)

Abstract

In the present paper, two concepts “defect degree” and “crystallization potential” are introduced for evaluating the defects in crystal and describing the potential field near the crystal surfaces, respectively. Based on vast MD simulations of Ni, Cu, Al and Ar crystal growth from different faces at various temperatures, it is shown that the defect degree decreases with increasing of the crystallization potential, indicating that the crystallization ability is determined uniquely by the crystallization potential, which can be obtained easily even with ab initio calculations. This result suggests a convenient way to evaluate the ability of materials to form perfect single crystals.

Keywords : single crystal, crystallization, molecular dynamics, material design

PACC : 6150C, 7115Q

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10574030) and the Shanghai Leading Academic Discipline Project (Grant No. B107).

[†] Corresponding author. E-mail: xjning@fudan.edu.cn