

Министерство науки и высшего образования  
Российской Федерации  
Федеральное государственное  
бюджетное образовательное учреждение  
высшего образования  
«Тверской государственный университет»

**ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ  
ИЗУЧЕНИЯ КЛАСТЕРОВ,  
НАНОСТРУКТУР  
И НАНОМАТЕРИАЛОВ**

***МЕЖВУЗОВСКИЙ СБОРНИК НАУЧНЫХ ТРУДОВ***

**выпуск 10**

**ТВЕРЬ 2018**

УДК 620.22:544+621.3.049.77+539.216.2:537.311.322: 530.145

ББК Ж36:Г5+В379

Ф50

Рецензирование статей осуществляется на основании Положения о рецензировании статей и материалов для опубликования в Межвузовском сборнике научных трудов «Физико-химические аспекты изучения кластеров, наноструктур и наноматериалов».

**Официальный сайт издания в сети Интернет:  
[www.physchemaspects.ru](http://www.physchemaspects.ru)**

**Ф50** Физико-химические аспекты изучения кластеров, наноструктур и наноматериалов [Текст]: межвуз. сб. науч. тр. / под общей редакцией В.М. Самсонова, Н.Ю. Сдобнякова. – Тверь: Твер. гос. ун-т, 2018. – Вып. 10. – 708 с.

ISBN 978-5-7609-1395-1

Зарегистрирован Федеральной службой по надзору в сфере связи, информационных технологий и массовых коммуникаций, свидетельство о регистрации СМИ ПИ № ФС 7747789 от 13.12.2011.

Сборник составлен из оригинальных статей теоретического и экспериментального характера, отражающих результаты исследований в области изучения физико-химических процессов с участием кластеров, наноструктур и наноматериалов физики, включая межфазные явления и нанотермодинамику. Сборник предназначен для научных и инженерно-технических работников, преподавателей ВУЗов, студентов и аспирантов. Издание подготовлено на кафедре общей физики Тверского государственного университета.

УДК 620.22:544+621.3.049.77+539.216.2:537.311.322: 530.145

ББК Ж36:Г5+В379

ISBN 978-5-7609-1395-1

ISSN 2226-4442

© Коллектив авторов, 2018  
© Тверской государственной  
университет, 2018

УДК 544.77:546.28

## МОЛЕКУЛЯРНО-ДИНАМИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ РАЗМЕРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ТЕМПЕРАТУРЫ ПЛАВЛЕНИЯ НАНОЧАСТИЦ КРЕМНИЯ

И.В. Талызин, М.В. Самсонов, С.А. Васильев, М.Ю. Пушкарь, В.В. Дронников,  
В.М. Самсонов

ФГБОУ ВО «Тверской государственный университет»  
170100, Тверь, ул. Желябова, 33  
samsonoff@inbox.ru

DOI: 10.26456/pcascnn/2018.10.618

**Аннотация:** Размерная зависимость температуры плавления наночастиц  $Si$  исследовалась с использованием как молекулярно-динамического, так и термодинамического моделирования, основывающегося на применении формулы Томсона. Результаты атомистического моделирования, полученные с использованием потенциала Стиллинджера-Вебера, согласуются с результатами других авторов, а также с результатами термодинамического моделирования и предсказывают уменьшение температуры плавления  $T_m$  наночастиц  $Si$  с увеличением их обратного радиуса  $R^{-1}$  по линейному закону. Имеющиеся экспериментальные данные предсказывают более низкие значения  $T_m$ , включая предельное значение  $T_m^{(\infty)}$ , отвечающее линейной экстраполяции экспериментальных точек к  $R^{-1} \rightarrow 0$  (т.е. к радиусу  $R \rightarrow \infty$ ), причем занижение составляет 200–300 К по сравнению с табличным значением температуры плавления кремния (1688 К). Учитывая это, сделан вывод о том, что молекулярно-динамические результаты для  $T_m(R^{-1})$ , полученные с использованием потенциала Стиллинджера-Вебера, являются более адекватными, чем имеющиеся экспериментальные данные.

*Ключевые слова:* наночастицы кремния, температура плавления, размерная зависимость, молекулярная динамика, термодинамика.

### 1. Введение

К настоящему времени кристаллический кремний является базовым материалом для современных полупроводниковых приборов, причем тонкие пластины («вафли»), являющиеся основой для изготовления полупроводниковых микросхем, получают распиливанием на тонкие слои макроскопических монокристаллов. Проблему прямого получения тонких кристаллических слоев кремния, пригодных для применения в электронике, например методом молекулярно-лучевой эпитаксии, так и не удалось разрешить. Вместе с тем, в последнее десятилетие большой интерес проявляется к нанокремнию, т.е. к наночастицам  $Si$  и иным низкоразмерным структурам на основе  $Si$  [1]. Следуя Р. Фейнману [2], методы получения наночастиц  $Si$  можно подразделить на подходы «сверху вниз», к которым относится метод измельчения (помола) макроскопических частиц, и подход «снизу вверх», отвечающий зарождению кристаллических наночастиц  $Si$  из жидкой и газовой фазы. Однако, как отмечается в [3], пригодные для применения в электронике

наночастицы  $Si$ , т.е. наночастицы с требуемой морфологией и кристалличностью, к настоящему времени так и не удалось получить.

Очевидно, контролируемые внешние воздействия, включая термическое воздействие, также могут оказывать существенное влияние на свойства уже полученных наночастиц  $Si$ . Соответственно, представляет интерес исследование влияния температуры на структуру и свойства наночастиц  $Si$ , а также на структурные переходы, индуцированные изменением температуры, т.е. нагревом и охлаждением наночастиц. К таким переходам относятся, в частности, плавление и кристаллизация наночастиц, экспериментальное изучение которых связано с рядом трудностей. С этой точки зрения, представляется целесообразным применение методов атомистического моделирования и, прежде всего, метода молекулярной динамики (МД) для изучения структурных превращений в наночастицах, включая их плавление и кристаллизацию.

Применительно к металлическим наночастицам размерная зависимость температуры плавления изучалась в ряде работ, включая наши работы, связанные с применением как МД [4, 5], так и термодинамического подхода, включая термодинамическую теорию подобия [6]. Размерная зависимость температуры кристаллизации металлических наночастиц изучалась в гораздо меньшей степени, хотя такая зависимость была обнаружена экспериментально Г.С. Ждановым еще в семидесятых годах [7], а позднее изучалась Р. Кофманом применительно к наночастицам свинца [8]. Что же касается МД моделирования, то очевидно впервые проблема размерной зависимости температуры кристаллизации  $T_c$  затрагивалась в работе [9], а ее первое более детальное исследование связано с нашей работой [10]. И как это ни странно, имеются лишь единичные работы, посвященные МД моделированию размерной зависимости температуры плавления  $T_m$  наночастиц  $Si$ . В частности, в работе [11] с использованием потенциала Стиллинджера-Вебера (Stillinger-Weber, SW) [12] находились температуры плавления наночастиц кремния трех размеров, содержащих 10557, 20521 и 32768 атомов. Детальное МД исследование зависимости  $T_m(N)$  в более широком интервале значений  $N$  ( $N$  – число атомов, содержащихся в частице) было проведено в работе [3] с использованием как потенциала [12], так и более сложного потенциала реактивного силового поля (Reactive Force Field, ReaxFF) [13, 14]. В результате было установлено, что недавно предложенный потенциал ReaxFF дает явно завышенные значения  $T_m$ . Соответственно, количественное сравнение с имеющимися экспериментальными данными [3] проводилось только для МД результатов, полученных с использованием потенциала SW.

## 2. Метод исследования

В данной работе для молекулярно-динамического исследования размерных зависимостей  $T_m$  и  $T_c$  мы воспользовались программой LAMMPS и несколькими потенциалами, предложенными для описания межатомного взаимодействия в  $Si$ , включая потенциалы SW, Терсоффа [15], а также потенциал с пространственной ориентацией связей (Angular Dependent Potential, ADP) с параметризацией [16], полученной с использованием результатов первопринципного моделирования. Однако нами также был сделан вывод, что потенциал SW дает более адекватные результаты для  $T_m$ . Вместе с тем, в отличие от металлических наноклапел, наноклапелы  $Si$  при охлаждении не кристаллизуются, а переходят в аморфное состояние. Соответственно, размерную зависимость  $T_c$  исследовать не удалось.

Термостатирование осуществлялось по методу Нозе-Гувера. Для моделирования структурных переходов в наночастице ее начальная конфигурация выбиралась в виде сферы, вырезанной из соответствующего монокристалла, и помещалась в ячейку моделирования при начальной температуре  $T = 300$  К. Далее воспроизводился цикл постепенного нагрева и охлаждения частицы. Начало нагревания сопровождалось релаксацией исходной кристаллической структуры, причем нагревание производилось до заранее заданной температуры  $T = 2300$  К, заведомо превышающей макроскопическую температуру плавления  $T_0 = 1688$  К [17], но, тем не менее, не настолько высокой, чтобы вызвать заметное испарение частицы и ее дестабилизацию. При последующем охлаждении конечное состояние частицы отвечало исходной температуре  $T = 300$  К, заведомо более низкой, чем макроскопическая температура плавления. Как и в наших предыдущих работах [4, 5], температура плавления определялась по скачку на температурной зависимости потенциальной (когезионной) части  $u$  удельной (в расчете на один атом) внутренней энергии. Применительно к металлическим наночастицам, мы наблюдали также скачок, отвечающий температуре кристаллизации  $T_c < T_m$  при охлаждении частицы [4, 5, 10]. Иными словами, для металлических наноклапелов наблюдалась петля гистерезиса плавления-кристаллизации. Однако, для наноклапелов  $Si$  даже при скорости охлаждения  $\dot{T}$  К/с, которая на порядок меньше скорости изменения температуры, которая обычно используется при моделировании плавления и кристаллизации металлических наноклапелов, капли  $Si$  не кристаллизуются, а переходят в аморфное состояние. Вместе с тем, для наночапел  $Si$  небольшого размера, содержащих 525 атомов, наблюдается некоторая петля гистерезиса, которая не образуется при больших размерах наночапел (начиная с

$N \geq 1000$ ). В частности, нами моделировались наночастицы  $Si$ , содержащие до 100153 атомов. В работах [3] и [11] максимальное число атомов в моделируемых наночастицах  $Si$  составляло примерно 34000 и 33000, соответственно. Расширение диапазона размеров моделируемых частиц оказалось возможным благодаря использованию параллельных вычислений на современных видеокартах.

Поскольку известная формула Томсона предсказывает линейную зависимость между температурой плавления наночастицы  $T_m$  и ее обратным радиусом  $R^{-1}$ , теоретические результаты для  $T_m$  обычно представляют в виде зависимости  $T_m(R^{-1})$  или  $T_m(N^{-1/3})$ .

### 3. Результаты и обсуждение

Как и следовало ожидать, для малых наночастиц ( $N = 525$ ) наблюдаются заметные флуктуации энергии  $u$ , но при этом имеет место четко выраженный скачок  $u$  при температуре  $T = 1325$  К, который и интерпретируется как температура плавления частицы  $T_m$ . Однако для мезоскопических по размеру наночастиц, содержащих от нескольких тысяч до нескольких сотен тысяч атомов, проявляется эффект поверхностного плавления, который приводит к некоторому различию между температурами начала и завершения плавления. В качестве примера на рис. 1 представлены центральные сечения одной из наночастиц  $Si$  ( $N = 100153$ ), отвечающие четырем различным температурам от  $T = 1680$  К (начало плавления) до  $T = 1740$  К (завершение плавления).

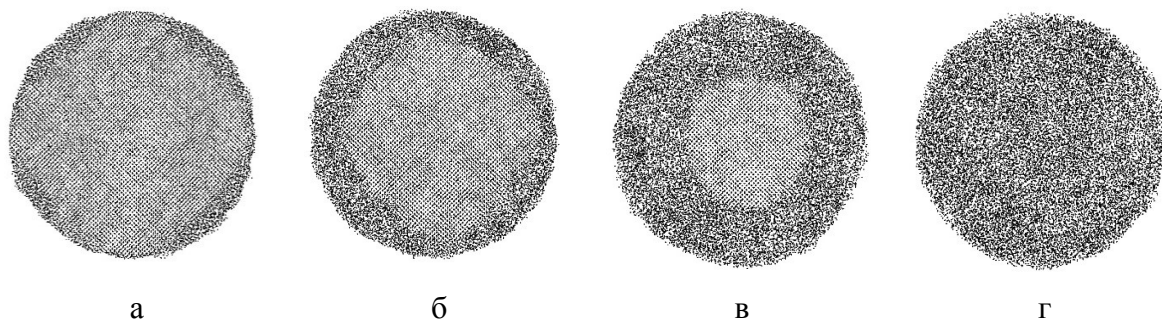


Рис. 1. Экваториальные сечения наночастицы  $Si$ , содержащей 100153 атомов для различных температур: а – отвечает  $T = 1680$  К, б –  $T = 1700$  К, в –  $T = 1720$  К, г –  $T = 1740$  К. Выбранный температурный интервал включает температуру плавления частиц данного размера  $T_m = 1710$  К.

Видно, что плавление действительно начинается с поверхности частицы, и при температуре 1720 К формируется выраженная структура кристаллическое ядро – оболочка расплава, толщина которой сравнима с

размером кристаллического ядра. В качестве температуры плавления мезоскопических наночастиц  $Si$  принималось значение, отвечающее середине интервала между температурами начала и завершения плавления. В данном случае температура плавления  $T_m$  полагалась равной 1710 К. Это значение температуры плавления практически совпадает с макроскопической температурой плавления кремния  $T_0 = 1688$  К [17]. Согласно [18], причиной поверхностного плавления является то обстоятельство, что поверхностное натяжение жидкости (расплава)  $\sigma_l$  меньше поверхностного натяжения  $\sigma_s$  соответствующей твердой поверхности. Эффект поверхностного плавления для мезоскопических металлических наночастиц детально обсуждался нами в работе [19].

На рис. 2 наши МД результаты для  $T_m(N^{-1/3})$ , полученные с использованием потенциала SW и представленные прямой 1, сравниваются как с МД результатами других авторов, полученными с использованием того же потенциала (прямые 2 и 3), так и с имеющимися экспериментальными данными (прямые 5 и 6). Из рисунка видно, что МД результаты демонстрируют линейную зависимость  $T_m$  от  $N^{-1/3}$ . Экспериментальные данные [20] и [21] хотя и характеризуются большим разбросом значений  $T_m$ , но также демонстрируют линейную корреляцию между  $T_m$  и  $N^{-1/3}$  (прямые 4 и 5). Однако эти экспериментальные данные отвечают гораздо более низким значениям  $T_m$ , чем отмеченные выше МД результаты. Вместе с тем, примечательно, что МД зависимости 1-3 и экспериментальные зависимости 4-5 характеризуются близкими коэффициентами наклона.

Нами были также предпринята попытка МД моделирования наночастиц  $Si$  с использованием потенциалов Терсоффа [15] и ADP с параметризацией [16]. Однако выяснилось, что наночастицы  $Si$ , описываемые потенциалом Терсоффа, демонстрируют тенденцию к спонтанному распаду, что, очевидно, физически неадекватно для частиц с ковалентной природой химической связи. Что же касается потенциала ADP, то полученные с его помощью результаты для  $T_m(N^{-1/3})$  представленные на рис. 2 прямой 6, более близки к экспериментальным зависимостям 4 и 5, чем прямые 1-3, отвечающие потенциалу SW. При этом прямой 6 соответствует  $T_m^{(\infty)} = 1406$  К, что примерно на 300 К ниже табличного значения температуры плавления кремния  $T_0 = 1688$  К. Кроме того, зависимость 6, отвечающая потенциалу ADP, значительно отличается от всех остальных зависимостей, представленных на рис. 2, коэффициентом наклона.

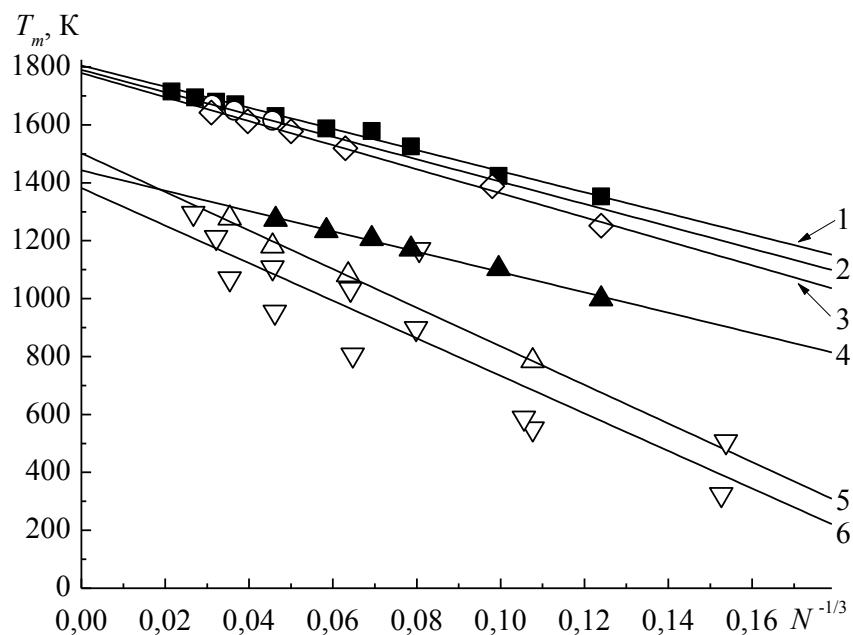


Рис. 2. Сравнение зависимостей  $T_m(N^{-1/3})$  для наночастиц  $Si$ , полученных в МД и лабораторных экспериментах: прямая 1, отвечающая точкам ■, – наши МД результаты, полученные с использованием потенциала SW ( $T_m^{(\infty)} = 1805$  K); прямая 2 и точки ○ – МД результаты [11], полученные с использованием того же потенциала ( $T_m^{(\infty)} = 1790$  K); зависимость 3, отвечающая точкам ◇, – МД результаты [3], также полученные с использованием потенциала SW ( $T_m^{(\infty)} = 1779$  K); прямая 4 и точки ▲ – наши МД результаты, полученные с использованием потенциала ADP ( $T_m^{(\infty)} = 1406$  K); зависимость 5 отвечает экспериментальным точкам △ [29] ( $T_m^{(\infty)} = 1502$  K); прямая 6 – экспериментальным точкам ▽[30] ( $T_m^{(\infty)} = 1382$  K).

#### 4. Заключение

Наши МД результаты, полученные с использованием потенциала SW, хорошо согласуются с МД результатами других авторов, полученными с использованием того же потенциала, и предсказывают уменьшение температуры плавления  $T_m$  наночастиц  $Si$  с уменьшением их размера по линейному закону, т.е. линейную зависимость  $T_m$  от обратного радиуса частицы  $R^{-1}$ . Таким образом, как и авторы работ [3, 11], мы приходим к выводу, что хотя потенциал SW был предложен ранее, чем все другие упомянутые выше потенциалы, он наиболее адекватно описывает размерную зависимость температуры плавления наночастиц кремния и дает наиболее адекватное предельное значение  $T_m^{(\infty)}$ , отвечающее макроскопической фазе  $Si$ .

*Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 18-43-690001) и Минобрнауки Российской Федерации в рамках*

выполнения государственного задания в сфере научной деятельности  
(проект № 3.5506.2017/БЧ).

### Библиографический список:

1. **Ищенко, А.А.** Нанокремний: свойства, получение, применение, методы исследования и контроля / А.А. Ищенко, Г.В. Фетисов, Л.А. Асланов. – М.: Физматлит, 2011. – 647 с.
2. **Feynman, R.P.** There's plenty of room at the bottom / R.P. Feynman // Engineering and Science. – 1960. – V. 22. – I. 5. – P.22-26.
3. **Sementa, L.** Molecular dynamics simulations of melting and sintering of *Si* nanoparticles: a comparison of different force fields and computational models / L. Sementa, G. Barcaro S. Monti, V. Carravetta // Physical Chemistry Chemical Physics. – 2018. – V. 20. – I. 3 – P. 1707-1715.
4. **Самсонов, В.М.** О причинах гистерезиса плавления и кристаллизации наночастиц / В.М. Самсонов, С.А. Васильев, И.В. Талызин, Ю.А. Рыжков // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2016. – Т. 103. – Вып. 2. – С. 100-105.
5. **Самсонов, В.М.** О влиянии скоростей нагрева и охлаждения на плавление и кристаллизацию металлических нанокластеров / В.М. Самсонов, И.В. Талызин, М.В. Самсонов // Журнал технической физики. – 2016. – Т. 86. – Вып. 6. – С. 149-152.
6. **Самсонов, В.М.** Размерная зависимость температуры плавления металлических нанокластеров с позиций термодинамического подобия / В.М. Самсонов, С.А. Васильев, А.Г. Бембель // Физика металлов и металловедение. – 2016. – Т. 117. – Вып. 8. – С. 775-781.
7. **Жданов, Г.С.** Кинетика плавления и кристаллизации островковых металлических пленок / Г.С. Жданов // Известия АН СССР. Серия физическая. – 1977. – Т. 41. – Вып. 5. – С. 1004-1008.
8. **Kofman, R.** Melting of clusters approaching  $0D$  / R. Kofman, P. Cheyssac, Y. Lereach, A. Stella // European Physical Journal D. – 1999. – V. 9. – I. 1. – P. 441-444.
9. **Qi, Yu.** Melting and crystallization in *Ni* nanoclusters: The mesoscale regime / Yu. Qi, T Çağgin, W.L. Johnson, W.A. Goddard III // The Journal of Chemical Physics. – 2001. – V. 115. – I. 1. – P. 385-394.
10. **Самсонов, В.М.** Молекулярно-динамическое исследование плавления и кристаллизации наночастиц / В.М. Самсонов, С.С. Харечкин, С.Л. Гафнер, Л.В. Редель, Ю.Я. Гафнер // Кристаллография. – 2009. – Т. 54. – № 3. – P. 530-536.
11. **Hang, N.T.T.** Size dependent melting of silicon nanoparticles / N.T.T. Hang // Communications in Physics. – 2014. – V. 24. – № 3. – P. 207-215.
12. **Stillinger, F.H.** Computer simulation of local order in condensed phases of silicon / F.H. Stillinger, T.A. Weber // Physical Review B. – 1985. – V. 31. – I. 8. – P. 5262-5271.
13. **Barcaro, G.** Parametrization of a reactive force field (ReaxFF) for molecular dynamics simulations of *Si* nanoparticles / G. Barcaro, S. Monti, L. Sementa, V. Carravetta // The Journal of Chemical Theory and Computation. – 2017. – V. 13. – I. 8. – P. 3854-3861.
14. **Barcaro, G.** Atomistic modelling of *Si* nanoparticles synthesis / G. Barcaro, S. Monti, L. Sementa, V. Carravetta // Crystals. – 2017. – V. 7. – I. 2. – Art. № 54. – 12 p.
15. **Tersoff, J.** New empirical approach for the structure and energy of covalent systems / J. Tersoff // Physical Review B. – 1988. – V. 37. – I. 12. – P. 6991-7000.

16. **Starikov, S.V.** Atomistic simulation of *Si–Au* melt crystallization with novel interatomic potential / S.V. Starikov, N.Yu. Lopanitsyna, D.E. Smirnova, S.V. Makarov // *Computational Materials Science*. – 2018. – V. 142. – P. 303–311.
17. Физические величины. Справочник / под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. – М.: Энергоатомиздат, 1991. – 1232 с.
18. **Скрипов, В.П.** Спонтанная кристаллизация переохлажденных жидкостей / В.П. Скрипов, В.П. Коверда. – М.: Наука, 1984. – С. 104-107.
19. **Самсонов, В.М.** Комплексное применение атомистического и термодинамического моделирования к исследованию размерной зависимости температуры плавления металлических наночастиц / В.М. Самсонов, И.В. Талызин, С.А. Васильев, А.Ю. Картошкин // *Физико-химические аспекты изучения кластеров, наноструктур и наноматериалов*. – 2017. – Вып. 9. – С. 411-421.
20. **Hirasawa, M.** Size-dependent crystallization of *Si* nanoparticles / M. Hirasawa, T. Orii, T. Seto // *Applied Physics Letters*. – 2006. – V. 88. – I. 9. – P. 093119-1-093119-3.
21. **Goldstein, A.** The melting of silicon nanocrystals: Submicron thin-film structures derived from nanocrystal precursors / A. Goldstein // *Applied Physics A: Materials Science & Processing*. – 1996. – V.62. – I. 1. – P. 33-37.

#### References:

1. **Ishchenko, A.A.** Nanokremnij: svojstva, poluchenie, primenenie, metody issledovaniya i kontrolya / A.A. Ishchenko, G.V. Fetisov, L.A. Aslanov. – М.: Fizmatlit, 2011. – 647 p.
2. **Feynman, R.P.** There's plenty of room at the bottom / R.P. Feynman // *Engineering and Science*. – 1960. – V. 22. – I. 5. – P.22-26.
3. **Sementa, L.** Molecular dynamics simulations of melting and sintering of *Si* nanoparticles: a comparison of different force fields and computational models / L. Sementa, G. Barcaro S. Monti, V. Carravetta // *Physical Chemistry Chemical Physics*. – 2018. – V. 20. – I. 3 – P. 1707-1715.
4. **Samsonov, V.M.** O prichinah gisterezisa plavleniya i kristallizacii nanochastic / V.M. Samsonov, S.A. Vasilyev, I.V. Talyzin, Yu.A. Ryzhkov // *Pis'ma v Zhurnal eksperimental'noj i teoreticheskoy fiziki*. – 2016. – V. 103. – I. 2. – P. 100-105.
5. **Samsonov, V.M.** O vliyaniy skorostej nagreva i ohlazhdeniya na plavlenie i kristallizaciyu metallicheskih nanoklasterov / V.M. Samsonov, I.V. Talyzin, M.V. Samsonov // *Zhurnal tekhnicheskoy fiziki*. – 2016. – V. 86. – I. 6. – P. 149-152.
6. **Samsonov, V.M.** Razmernaya zavisimost' temperatury plavleniya metallicheskih nanoklasterov s pozicij termodinamicheskogo podobiya / V.M. Samsonov, S.A. Vasilyev, A.G. Bembel // *Fizika metallov i metallovedenie*. – 2016. – V. 117. – I. 8. – P. 775-781.
7. **Zhdanov, G.S.** Kinetika plavleniya i kristallizacii ostrovkovykh metallicheskih plenok / G.S. Zhdanov // *Izvestiya AN SSSR. Seriya fizicheskaya*. – 1977. – V. 41. – I. 5. – P. 1004-1008.
8. **Kofman, R.** Melting of clusters approaching  $0D$  / R. Kofman, P. Cheyssac, Y. Lereach, A. Stella // *European Physical Journal D*. – 1999. – V. 9. – I. 1. – P. 441-444.
9. **Qi, Yu.** Melting and crystallization in *Ni* nanoclusters: The mesoscale regime / Yu. Qi, T Çağgin, W.L. Johnson, W.A. Goddard III // *The Journal of Chemical Physics*. – 2001. – V. 115. – I. 1. – P. 385-394.
10. **Samsonov, V.M.** Molekulyarno-dinamicheskoe issledovanie plavleniya i kristallizacii nanochastic / V.M. Samsonov, S.S. Harechkin, S.L. Gafner, L.V. Redel', Yu.Ya. Gafner // *Kristallografiya*. – 2009. – V. 54. – no. 3. – P. 530-536.

11. **Hang, N.T.T.** Size dependent melting of silicon nanoparticles / N.T.T. Hang // Communications in Physics. – 2014. – V. 24. – № 3. – P. 207-215.
12. **Stillinger, F.H.** Computer simulation of local order in condensed phases of silicon / F.H. Stillinger, T.A. Weber // Physical Review B. – 1985. – V. 31. – I. 8. – P. 5262-5271.
13. **Barcaro, G.** Parametrization of a reactive force field (ReaxFF) for molecular dynamics simulations of *Si* nanoparticles / G. Barcaro, S. Monti, L. Sementa, V. Carravetta // The Journal of Chemical Theory and Computation. – 2017. – V. 13. – I. 8. – P. 3854-3861.
14. **Barcaro, G.** Atomistic modelling of *Si* nanoparticles synthesis / G. Barcaro, S. Monti, L. Sementa, V. Carravetta // Crystals. – 2017. – V. 7. – I. 2. – Art. № 54. – 12 p.
15. **Tersoff, J.** New empirical approach for the structure and energy of covalent systems / J. Tersoff // Physical Review B. – 1988. – V. 37. – I. 12. – P. 6991-7000.
16. **Starikov, S.V.** Atomistic simulation of *Si–Au* melt crystallization with novel interatomic potential / S.V. Starikov, N.Yu. Lopanitsyna, D.E. Smirnova, S.V. Makarov // Computational Materials Science. – 2018. – V. 142. – P. 303–311.
17. Физические величины. Справочник / под ред. И.С. Григор'ева, Е.З. Межлхова. – М.: Энергоатомиздат, 1991. – 1232 p.
18. **Skripov, V.P.** Spontannaya kristallizaciya pereohlazhdennyh zhidkostej / V.P. Skripov, V.P. Koverda. – М.: Nauka, 1984. – P. 104-107.
19. **Samsonov, V.M.** Kompleksnoe primeneniye atomisticheskogo i termodinamicheskogo modelirovaniya k issledovaniyu razmernoj zavisimosti temperatury plavleniya metallicheskih nanochastic / V.M. Samsonov, I.V. Talyzin, S.A. Vasilyev, A.Yu. Kartoshkin // Fiziko-himicheskie aspekty izucheniya klasterov, nanostruktur i nanomaterialov. – 2017. – I. 9. – P. 411-421.
20. **Hirasawa, M.** Size-dependent crystallization of *Si* nanoparticles / M. Hirasawa, T. Orii, T. Seto // Applied Physics Letters. – 2006. – V. 88. – I. 9. – P. 093119-1-093119-3.
21. **Goldstein, A.** The melting of silicon nanocrystals: Submicron thin-film structures derived from nanocrystal precursors / A. Goldstein // Applied Physics A: Materials Science & Processing. – 1996. – V.62. – I. 1. – P. 33-37.

#### MOLECULAR DYNAMICS RESEARCH OF SIZE DEPENDENCE OF THE MELTING TEMPERATURE OF SILICON NANOPARTICLES

I.V. Talyzin, M.V. Samsonov, S.A. Vasilyev, M.Yu. Pushkar, V.V. Dronnikov, V.M. Samsonov  
Tver State University

DOI: 10.26456/pcascnn/2018.10.618

**Abstract:** Size dependence of the melting temperature of *Si* nanoparticles has been investigated combining molecular dynamics and thermodynamic simulations. The results of the atomistic simulation obtained using the Stillinger-Weber potential agree with the results of other authors and with the thermodynamic simulation results based on Thomson's formula. These results predict that the melting temperature  $T_m$  of *Si* nanoparticles diminishes with increasing their reciprocal radius  $R^{-1}$  following to the linear law. The available experimental data predict much lower values of  $T_m$ , including underestimated values of the limiting value  $T_m^{(\infty)}$  found by means of the linear extrapolation of experimental dots to  $R^{-1} \rightarrow 0$  (i.e. to the particle radius  $R \rightarrow \infty$ ), and the underestimation of  $T_m^{(\infty)}$  ranges from 200 to 300 K in comparison with the melting point 1688 K of the bulk crystalline *Si*. Taking into account the obtained results and their comparison with available results of other authors, a conclusion is made that molecular dynamics results, obtained by using the Stillinger-Weber potential, should be more adequate than the available experimental data on the melting temperature of *Si* nanoparticles.

**Физико-химические аспекты изучения кластеров,  
наноструктур и наноматериалов**

---

*Keywords: silicon nanoparticles, melting temperature, size dependence, molecular dynamics, thermodynamics.*

*Тальзин Игорь Владимирович – научный сотрудник Управления научных исследований ФГБОУ ВО «Тверской государственной университет»*

*Самсонов Максим Владимирович – научный сотрудник ФГБОУ ВО «Тверской государственной университет»*

*Васильев Сергей Александрович – младший научный сотрудник Управления научных исследований ФГБОУ ВО «Тверской государственной университет»*

*Пушкарь Максим Юрьевич – к.ф.-м.н., научный сотрудник ФГБОУ ВО «Тверской государственной университет»*

*Дронников Владимир Владиславович – к.ф.-м.н., научный сотрудник ФГБОУ ВО «Тверской государственной университет»*

*Самсонов Владимир Михайлович – д.ф.-м.н., профессор кафедры общей физики ФГБОУ ВО «Тверской государственной университет»*

*Igor V. Talyzin – Researcher of Management of Scientific Research, Tver State University*

*Maksim V. Samsonov – Researcher of Tver State University*

*Sergey A. Vasilyev – Junior Researcher of Management of Scientific Research, Tver State University*

*Maksim Yu. Pushkar – Ph. D., Researcher of Tver State University*

*Vladimir V. Dronnikov – Ph. D., Researcher of Tver State University*

*Vladimir M. Samsonov – Dr. Sc., Full Professor of General Physics Department, Tver State University*