

NGHIÊN CỨU SỰ KHUẾCH TÁN CỦA NGUYÊN TỬ XEN KẼ TRONG HỢP KIM XEN KẼ AuSi VỚI CẤU TRÚC LẬP PHƯƠNG TÂM DIỆN

Nguyễn Quang Học¹, Nguyễn Đức Hiền², Nguyễn Ngọc Lê¹, Vũ Thùy Linh¹
Phạm Huyền Trang¹ và Lê Hồng Việt³

¹Khoa Vật lý, Trường Đại học Sư phạm Hà Nội

²Trường Trung học phổ thông Mạc Đĩnh Chi, Chu Pah, Gia Lai

³Khoa Khoa học Tự nhiên, Trường Sĩ quan Lục quân 1

Tóm tắt. Bài báo rút ra biểu thức giải tích của hệ số khuếch tán của nguyên tử xen kẽ phụ thuộc vào độ biến dạng và áp suất đối với hợp kim xen kẽ AB với cấu trúc lập phương tâm diện (LPTD) bằng phương pháp thống kê mômen trên cơ sở kết quả nghiên cứu trước đây đối với kim loại và chất bán dẫn. Kết quả lý thuyết được áp dụng cho hợp kim AuSi. Các kết quả tính số của chúng tôi nghiệm đúng định luật Arrhenius

Từ khóa: hợp kim xen kẽ, hệ số khuếch tán, độ biến dạng, áp suất, AuSi, định luật Arrhenius, phương pháp thống kê mômen.

1. Mở đầu

Khi biến dạng, hình dáng và kích thước của vật liệu bị biến đổi và điều đó dẫn đến sự thay đổi của hằng số mạng và các tính chất vật lý của của hệ như tính chất nhiệt, tính chất điện, tính chất từ,... Đặc biệt là sự biến dạng của một vật ảnh hưởng mạnh đến hiện tượng khuếch tán. Gần đây, vấn đề này thu hút sự quan tâm của nhiều nhà khoa học [1-3]. Tuy nhiên, hầu như các công trình nghiên cứu tập trung vào các chất bán dẫn.

Có nhiều phương pháp lý thuyết trong nghiên cứu khuếch tán của tinh thể như lý thuyết thống kê cổ điển (mô hình Einstein), lý thuyết tốc độ phản ứng [4], lý thuyết động lực học [5, 6]. Nhìn chung, các phương pháp lý thuyết này đều có hạn chế như không xác định được biểu thức giải tích của năng lượng kích hoạt và thừa số trước hàm mũ trong hệ số khuếch tán mà thường phải xác định dưới dạng các công thức bán kinh nghiệm hoặc chứa các thông số chưa biết. Hơn nữa, đóng góp của hiệu ứng phi điều hoà trong dao động mạng bị bỏ qua. Về thực nghiệm, mặc dù có nhiều phương pháp nghiên cứu khuếch tán như phương pháp cộng hưởng từ, phương pháp phân tử đánh dấu, phương pháp tán xạ neutron nhiệt,... nhưng các kết quả đo được bằng các phương pháp khác nhau có sự sai lệch khá lớn [7]. Nhằm khắc phục những hạn chế trên trong bài báo này, chúng tôi đã áp dụng của phương pháp thống kê mômen [7] vào nghiên cứu quá trình khuếch tán của các hợp kim xen kẽ nhị nguyên khi kể đến hiệu ứng phi điều hoà của dao động mạng [8-11].

Việc nghiên cứu ảnh hưởng của ứng suất lên hiện tượng khuếch tán giúp chúng ta hiểu sâu sắc hơn về cơ chế khuếch tán của nguyên tử [1]. Ứng suất ở đây bao gồm ứng suất thủy tĩnh

Ngày nhận bài: 20/2/2021. Ngày sửa bài: 13/3/2021. Ngày nhận đăng: 20/3/2021.

Tác giả liên hệ: Nguyen Quang Hoc. Địa chỉ e-mail: hocnq@hnue.edu.vn

hay còn gọi là áp suất và ứng suất không thủy tĩnh hay còn gọi là ứng suất. Ảnh hưởng của ứng suất và áp suất lên hệ số khuếch tán của kim loại và bán dẫn nguyên tố đã được xem xét trong [12, 13]. Trong bài báo này, chúng tôi phát triển ý tưởng trong [12, 13] để rút ra sự phụ thuộc của hệ số khuếch tán vào độ biến dạng và áp suất đối với hợp kim xen kẽ nhị nguyên với cấu trúc LPTD bằng cách áp dụng phương pháp thống kê mômen. Kết quả lí thuyết được áp dụng tính số cho hợp kim AuSi.

2. Nội dung nghiên cứu

2.1. Kết quả lí thuyết

Có hai cơ chế khuếch tán chính là cơ chế xen kẽ và cơ chế nút khuyết. Trong hợp kim xen kẽ, cơ chế nút khuyết là cơ chế khuếch tán có ưu thế hơn. Từ điều kiện cực tiểu của thế nhiệt động Gibbs trong hợp kim xen kẽ AB có nút khuyết với cấu trúc LPTD có thể suy ra nồng độ nút khuyết cân bằng như sau [8-11]

$$\begin{aligned} n_v^{AB} &= \exp\left(-\frac{g_v^f(AB)}{k_{B_0}T}\right) = n_v^A \exp\left(-\frac{c_B g_v^f(B)}{k_{B_0}T}\right), \\ n_v^A &= \exp\left(-\frac{c_A g_v^f(A) + c_{A_1} g_v^f(A_1) + c_{A_2} g_v^f(A_2)}{k_{B_0}T}\right), \end{aligned} \quad (1)$$

trong đó k_{B_0} là hằng số Boltzmann, A là nguyên tử kim loại chính A trong kim loại tinh khiết có cấu trúc LPTD, A_1 là nguyên tử kim loại chính A ở các tâm diện của ô mạng lập phương, A_2 là nguyên tử kim loại chính A ở các đỉnh của ô mạng lập phương, B là nguyên tử xen kẽ ở tâm khối của ô mạng lập phương, $c_A = 1 - 15c_B$ là nồng độ nguyên tử A, $c_{A_1} = 6c_B$ là nồng độ nguyên tử A_1 , $c_{A_2} = 8c_B$ là nồng độ nguyên tử A_2 và c_B là nồng độ nguyên tử B và $g_v^f(X)$ là sự thay đổi thế nhiệt động Gibbs của một nguyên tử X ($X = A, A_1, A_2, B$) để tạo thành một nút khuyết

$$g_v^f(X) = -u_{0X}^* + \Delta\psi_X^0 + P\Delta V_X. \quad (2)$$

Ở đây, $\Delta\psi_X^0$ là sự thay đổi năng lượng tự do Helmholtz của một nguyên tử X khi nó dịch chuyển khỏi nút mạng để tạo thành một nút khuyết, u_{0X}^* là năng lượng liên kết của một nguyên tử X trong hệ, ΔV_X là thể tích kích hoạt ứng với nguyên tử X (sự thay đổi thể tích của mạng tinh thể khi tạo ra một nút khuyết).

Nếu giả thiết sau khi dịch chuyển sang vị trí mới, nguyên tử tinh thể X có giá trị năng lượng tự do Helmholtz là $\psi_X'^0 = B_X \psi_X^0$ với B_X là một hệ số tỉ lệ được coi như một hằng số thì ta có thể viết biểu thức của $\Delta\psi_{0X}$ như sau [8-11]

$$\Delta\psi_X^0 = \psi_X'^0 - \psi_X^0 = (B_X - 1)\psi_X^0. \quad (3)$$

Năng lượng tự do Helmholtz của hợp kim xen kẽ AB lí tưởng với cấu trúc LPTD ứng với một nguyên tử có dạng [8-11]

$$\psi_{AB}^0 = c_A \psi_A^0 + c_B \psi_B^0 + c_{A_1} \psi_{A_1}^0 + c_{A_2} \psi_{A_2}^0 - TS_{AB}^c, \quad (4)$$

trong đó ψ_X^0 ($X = A, A_1, A_2, B$) là năng lượng tự do của một nguyên tử X và có dạng

$$\psi_X^0 = U_{0X} + \psi_{0X} + 3N \left\{ \frac{\theta^2}{k_X^2} \left[\gamma_{2X} Y_X^2 - \frac{2\gamma_{1X}}{3} \left(1 + \frac{Y_X}{2} \right) \right] + \frac{2\theta^3}{k_X^4} \left[\frac{4}{3} \gamma_{2X}^2 Y_X \left(1 + \frac{Y_X}{2} \right) - 2(\gamma_{1X}^2 + 2\gamma_{1X}\gamma_{2X}) \left(1 + \frac{Y_X}{2} \right) (1 + Y_X) \right] \right\}, Y_X \equiv x_X \coth x_X, \quad (5)$$

$$\psi_{0X} = 3N\theta \left[x_X + \ln(1 - e^{-2x_X}) \right], X = A, A_1, A_2, B. \quad (6)$$

Trong phép gần đúng điều hòa,

$$\psi_X^0 \approx u_{0X} + 3\theta \left[x_X + \ln(1 - e^{-2x_X}) \right]. \quad (7)$$

$u_{0X} = \frac{U_{0X}}{N}$ là năng lượng liên kết của một nguyên tử X, N là số nguyên tử của hợp kim,

$\theta = k_{Bo}T$, $S_{AB}^c = k_{Bo} \ln \frac{(N_A + N_B)!}{N_A! N_B!}$ là entropi cấu hình của hợp kim AB.

Do thế nhiệt động Gibbs $G = H - TS$, trong đó H là entanpi nên

$$g_v^f(X) = h_v^f(X) - Ts_v^f(X), \quad (8)$$

trong đó $h_v^f(X)$ và $s_v^f(X)$ tương ứng là entanpi và entropi ứng với một nguyên tử X để tạo thành một nút khuyết.

Nếu cơ chế khuếch tán là do sự trao đổi vị trí giữa nguyên tử ở nút mạng với nút khuyết ở nút bên cạnh thì hệ số khuếch tán của nguyên tử xen kẽ B trong hợp kim xen kẽ AB có cấu trúc LPTD có dạng [8-11]

$$D = g\Gamma n_v r_1^2, \quad (9)$$

trong đó $g = n_1 f$, f là thừa số tương quan và n_1 là số nguyên tử trên quả cầu phối vị thứ nhất, Γ là tần số bước nhảy và r_1 là độ dài bước nhảy hiệu dụng đối với nguyên tử xen kẽ B. $f = 1$ khi tất cả các nguyên tử bao quanh một nút khuyết có cùng bước nhảy hiệu dụng. Vì nguyên tử ở gần nút khuyết khi nhảy vào vị trí của nút khuyết có xác suất lớn hơn so với các nguyên tử ở xa nút khuyết nên khi đó $f < 1$. Một cách gần đúng,

$$f \approx \left(1 - \frac{1}{n_1} \right)^2 \approx 1 - \frac{2}{n_1}, \quad (10)$$

Đối với nguyên tử xen kẽ B trong hợp kim xen kẽ AB có cấu trúc LPTD, $n_1 = 12$, $f = 0,83$. Thừa số tương quan phụ thuộc vào đặc tính hình học của mạng và không phụ thuộc vào nhiệt độ. Sự phụ thuộc nhiệt độ của thừa số tương quan liên quan ảnh hưởng của nút khuyết kép vào sự khuếch tán ở nhiệt độ cao.

Tần số bước nhảy của nguyên tử xen kẽ B trong hợp kim xen kẽ AB có cấu trúc LPTD được xác định bởi

$$\Gamma = \frac{\omega}{2\pi} \exp \left(\frac{\Delta\psi_B^{0(1)}}{k_{Bo}T} \right), \quad (11)$$

trong đó ω là tần số dao động của nguyên tử B. $\Delta\psi_B^{0(1)}$ là sự thay đổi năng lượng tự do Helmholtz của nguyên tử B nằm trên quả cầu phối vị thứ nhất có tâm là nút khuyết khi dịch chuyển vào vị trí của nút khuyết và được viết dưới dạng

$$\Delta\psi_B^{0(1)} = (B'_B - 1)\psi_B^{0(1)}, \quad (12)$$

trong đó B'_B là hằng số giống như B_X trong công thức (4).

Có thể viết lại hệ số khuếch tán của nguyên tử xen kẽ B trong hợp kim xen kẽ AB có cấu trúc LPTD dưới dạng

$$D = D_0 \exp\left(\frac{-h_v^f + \Delta\psi_B^{0(1)}}{k_{Bo}T}\right), \quad (13)$$

$$D_0 = \frac{n_1 f \omega r_1^2}{2\pi} \exp\left(\frac{s_v^f}{k_{Bo}}\right). \quad (14)$$

Năng lượng kích hoạt nguyên tử xen kẽ B gồm entanpi tạo thành nút khuyết và entanpi dịch chuyển nút khuyết

$$Q = h_v^f + h_v^m, \quad (15)$$

trong đó h_v^m là entanpi dịch chuyển nút khuyết và được xác định bởi

$$h_v^m = g_v^m + Ts_v^m = -\Delta\psi_B^{0(1)}. \quad (16)$$

Từ các kết quả trên đây suy ra

$$Q = -u_{0B}^* + \Delta\psi_B^0 - \Delta\psi_B^{0(1)} + Ts_v^f + P\Delta V_B \quad (17)$$

và

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{Q}{k_{Bo}T}\right). \quad (18)$$

Sự phụ thuộc nhiệt độ và áp suất của năng lượng kích hoạt và hệ số khuếch tán của tinh thể có thể được xác định một cách gần đúng bởi

$$Q(P, T) \approx Q(0, T) + P\Delta V_B + Ts_v^f, \quad (19)$$

$$Q(0, T) = -u_{0B}^*(0, T) + \Delta\psi_B^0(0, T) - \Delta\psi_B^{0(1)}(0, T) \quad (20)$$

và

$$D(P, T) \approx D_0(P, T) \exp\left[-\frac{Q(0, T)}{k_{Bo}T}\right], \quad (21)$$

$$D_0(P, T) = \frac{n_1 f \omega r_1^2}{2\pi} \exp\left(\frac{s_v^f}{k_{Bo}}\right) \exp\left(-\frac{P\Delta V}{k_{Bo}T}\right). \quad (22)$$

Tại $P = 0$,

$$D(0, T) \approx D_0(0, T) \exp\left[-\frac{Q(0, T)}{k_{Bo}T}\right], \quad (23)$$

$$D_0(0, T) = \frac{n_1 f \omega r_1^2}{2\pi} \exp\left(\frac{s_v^f}{k_{Bo}}\right). \quad (24)$$

Entrôpi tạo nút khuyết s_v^f có thể được xác định trong phép gần đúng hai quả cầu phối vị đầu tiên với tâm là nút khuyết với số nguyên tử là n_1 và n_2 bởi [13].

$$s_v^f = \frac{\frac{\partial u_{0B}^*}{\partial T} - (B_B - 1) \frac{\partial \psi_B^0}{\partial T} - \frac{g_v^f(B) + \frac{\partial u_{0B}^*}{\partial T} - (B_B - 1) \frac{\partial \psi_B^0}{\partial T}}{k_{Bo} T^2} g_v^f(B) + k_{Bo} \ln(N+1)}{n_1 + n_2}. \quad (25)$$

Các hằng số B_B và B'_B được xác định bởi [15]

$$B_B \approx 1 + \frac{u_{0B}^*}{\psi_B^0}, \quad (26)$$

$$B'_B \approx 1 + \frac{u_{0B}^* - \Delta \psi_B^0}{2\psi_B^{0(1)}}. \quad (27)$$

Ảnh hưởng của ứng suất lên sự khuếch tán thể hiện qua hàm công chống lại trường ứng suất trong khi hình thành nút khuyết. Dưới tác dụng của ứng suất kéo lưỡng trục, nồng độ nút khuyết cân bằng trong tinh thể có dạng [1]

$$n_v(\sigma) = n_v(0) \exp\left(\frac{\sigma V^r}{k_{Bo} T}\right), \quad (28)$$

trong đó V^r là thể tích hồi phục mạng. Đó là sự thay đổi thể tích mạng khi một nút khuyết hình thành và dịch chuyển đến bề mặt mẫu. σ là ứng suất và $n_v(0)$ là nồng độ nút khuyết cân bằng của tinh thể không chịu tác dụng của ứng suất và có dạng (1).

Mối quan hệ giữa các hệ số khuếch tán $D(\sigma)$, $D(0)$, nhiệt độ T , ứng suất lưỡng trục σ theo phương vuông góc với bề mặt tự do, thể tích hồi phục V^r và thể tích dịch chuyển nút khuyết V^m (sự thay đổi thể tích mạng khi nút khuyết dịch chuyển tới vị trí ổn định mới) được cho bởi [1].

$$D(\sigma) = D(0) \exp\left[\frac{\sigma(V^r + V^m)}{k_{Bo} T}\right], \quad (29)$$

trong đó $D(0)$ là hệ số khuếch tán của tinh thể khi chưa chịu tác dụng của ứng suất và có dạng (23)

$$D(0) \equiv D(0, T) = D_0(0, T) \exp\left[-\frac{Q(0, T)}{k_{Bo} T}\right].$$

Do đó,

$$D(\sigma) = D_0(\sigma) \exp\left[-\frac{Q(0, T)}{k_{Bo} T}\right], \quad (30)$$

$$D_0(\sigma) = D_0(0, T) \exp \left[\frac{\sigma(V^r + V^m)}{k_{Bo}T} \right]. \quad (31)$$

Đối với kim loại và hợp kim, sự phụ thuộc của hệ số khuếch tán vào ứng suất là do sự phụ thuộc ứng suất của hệ số trước hàm mũ trong hệ số khuếch tán và năng lượng kích hoạt không phụ thuộc vào ứng suất. Kết quả này phù hợp với nghiên cứu của Johansson và Toxvaerd [14].

Có thể tính các thể tích V^r và V^m bằng phương pháp tĩnh học phân tử hoặc mô phỏng động lực học [1]. Theo các kết quả lí thuyết và thực nghiệm, V^m rất nhỏ so với V^r và thể tích nguyên tử [1] và do đó, ta thường bỏ qua V^m trong tính toán. Ta có thể tính V^r từ điều kiện cực tiểu của năng lượng tự do Helmholtz ψ_{AB}^0 của hợp kim lí tưởng và năng lượng tự do Helmholtz ψ_{AB}^{kt} của hợp kim có khuyết tật, nghĩa là từ các điều kiện

$$\left(\frac{\partial \psi_{AB}^0}{\partial a_{AB}^{lt}} \right)_{P,T} = 0, \left(\frac{\partial \psi_{AB}^{kt}}{\partial a_{AB}^{kt}} \right)_{P,T} = 0. \quad (32)$$

Từ đó, ta xác định được các khoảng lân cận gần nhất trung bình giữa hai nguyên tử a_{AB}^{lt} và a_{AB}^{kt} trong hợp kim lí tưởng và hợp kim có khuyết tật [14]. Khi đó đối với hợp kim có cấu trúc LPTD,

$$V^r = \frac{\sqrt{2}}{2} (a_{AB}^{kt3} - a_{AB}^{lt3}). \quad (33)$$

Đối với hợp kim xen kẽ AB có cấu trúc LPTD, ψ_{AB}^0 có dạng (4) và ψ_{AB}^{kt} có dạng sau [15]

$$\begin{aligned} \psi_{AB}^{kt} = & \left[1 - n_v n_1 + n_v (B_A - 1) \right] c_A \psi_A + n_v n_1 c_A \psi_A^{(1)} + \left[1 - n_v n_1 + n_v (B_B - 1) \right] c_B \psi_B + n_v n_1 c_B \psi_B^{(1)} + \\ & + \left[1 - n_v n_1 + n_v (B_{A_1} - 1) \right] c_{A_1} \psi_{A_1} + n_v n_1 c_{A_1} \psi_{A_1}^{(1)} + \left[1 - n_v n_1 + n_v (B_{A_2} - 1) \right] c_{A_2} \psi_{A_2} + n_v n_1 c_{A_2} \psi_{A_2}^{(1)} - \\ & - T (S_{AB}^{c*} + S_{AB}^c), S_{AB}^c = k_{Bo} \ln \frac{(N_A + N_B)!}{N_A! N_B!}, S_{AB}^{c*} = k_{Bo} \ln \frac{(N_A + N_B + n)!}{N_A! N_B! n!}, \end{aligned} \quad (34)$$

trong đó N_A, N_B, n tương ứng là số nguyên tử A, số nguyên tử B và số nút khuyết trong hợp kim. Mối quan hệ giữa ứng suất σ và độ biến dạng ε được mô tả bởi [13]

$$\sigma = \sigma_0 \varepsilon^{\alpha^*}, \quad (35)$$

trong đó σ_0 và α^* là các hằng số vật liệu. Do đó, ta có thể viết lại (29) thành

$$D(\sigma) = D(0) \exp \left[\frac{\sigma_0 \varepsilon^{\alpha^*} (V^r + V^m)}{k_{Bo}T} \right], \quad (36)$$

trong đó $D(0)$ là hệ số khuếch tán của tinh thể không bị biến dạng ở nhiệt độ T . Vì σ_0 và α^* là các hằng số riêng cho từng vật liệu nên (36) xác định sự phụ thuộc của hệ số khuếch tán vào độ biến dạng và nhiệt độ. Ta có thể viết [13]

$$D(\varepsilon) = D_0(\varepsilon) \exp \left[-\frac{Q(0, T)}{k_{Bo}T} \right], \quad (37)$$

$$D_0(\varepsilon) = D_0(0, T) \exp \left[\frac{\sigma_0 \varepsilon^{\alpha^*} (V^r + V^m)}{k_{Bo} T} \right]. \quad (38)$$

Bây giờ ta xét ảnh hưởng của áp suất lên hệ số khuếch tán. Sự phụ thuộc của hệ số khuếch tán D vào áp suất P thông qua số hạng $P\Delta V$. ΔV là thể tích kích hoạt tạo nút khuyết ($\Delta V \equiv V^f$). Ta sẽ rút ra sự phụ thuộc nói trên thông qua thể tích kích hoạt V^a . $V^a = V^f + V^m$ trong đó V^m là thể tích kích hoạt dịch chuyển nút khuyết. V^a là sự khác nhau giữa thể tích tinh thể ở trạng thái có nguyên tử khuyết tán và thể tích tinh thể ở trạng thái không có nguyên tử khuyết tán. Vì $V = \left(\frac{\partial G}{\partial P} \right)_T$ nên từ $G = H - TS$, (14), (15) và (18) suy ra

$$\left(\frac{\partial \ln D}{\partial P} \right)_T = -\frac{V^a}{k_{Bo} T} + \left(\frac{\partial \ln(\omega r_1^2)}{\partial P} \right)_T.$$

Số hạng thứ hai ở vế phải thường nhỏ hơn nhiều so với số hạng thứ nhất nên có thể bỏ qua. Do đó, ảnh hưởng của áp suất lên hệ số khuếch tán được xác định thông qua thể tích kích hoạt V^a của tinh thể như sau:

$$-k_{Bo} T \frac{\partial D(P)}{\partial P} = V^a. \quad (39)$$

Kết quả này trùng kết quả của [1]. Như vậy, V^a có dạng [16]

$$V^a = V^f + V^m = v + V^r + V^m. \quad (40)$$

$v = V^f - V^r$ là sự chênh lệch giữa thể tích kích hoạt tạo nút khuyết và thể tích hồi phục mạng.

Nồng độ nút khuyết cân bằng $n_v(P)$ trong tinh thể chịu tác dụng của áp suất thủy tĩnh P có thể viết dưới dạng

$$n_v(P) = n_v(0) \exp \left(-\frac{PV^a}{k_{Bo} T} \right), \quad (41)$$

trong đó $n_v(0)$ là nồng độ nút khuyết cân bằng trong tinh thể ở áp suất không.

Trong hiện tượng khuếch tán, độ linh động của nút khuyết đóng vai trò quan trọng và có ảnh hưởng trực tiếp đến hệ số khuếch tán của nguyên tử. Ở đây, áp suất thủy tĩnh là đẳng hướng nên độ linh động của nút khuyết trong mẫu là như nhau theo mọi phương. Do đó, hệ số khuếch tán theo bất kỳ hướng nào của mẫu đều có dạng

$$D(P) = D(0) \exp \left(-\frac{PV^a}{k_{Bo} T} \right). \quad (42)$$

Ở đây, $D(0)$ là hệ số khuếch tán trong tinh thể tại áp suất không và có dạng (23). Từ (23) và (42) suy ra [13]

$$D(P) = D_0(P) \exp \left[-\frac{Q(0, T)}{k_{Bo} T} \right], \quad (43)$$

$$D_0(P) = D_0(0,T) \exp\left(-\frac{PV^a}{k_{Bo}T}\right). \quad (44)$$

2.2. Kết quả tính số đối với AuSi

Đối với các tương tác Au-Au và Si-Si, chúng tôi sử dụng thế Mie-Lennard-Jones như sau [17]:

$$\varphi(r) = \frac{D}{n-m} \left[m \left(\frac{r_0}{r} \right)^n - n \left(\frac{r_0}{r} \right)^m \right], \quad (45)$$

trong đó các thông số thế m, n, D, r_0 được cho trong Bảng 1.

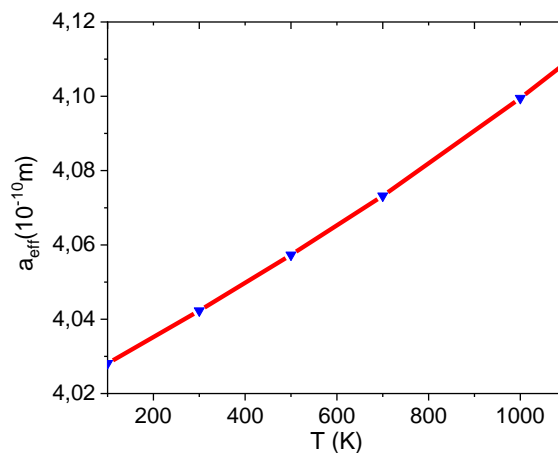
Bảng 1. Các thông số thế m, n, D, r_0 đối với các tương tác Au-Au và Si-Si

Tương tác	m	n	$D/k_B(K)$	$r_0(10^{-10}m)$
Au-Au [18]	1,96	15,56	7411,5	2,8751
Si-Si [17]	6	12	32701,7	2,295

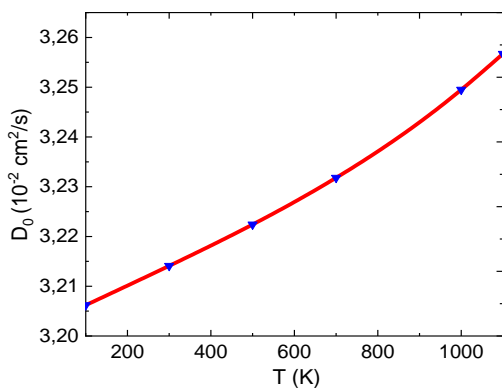
Tương tác Au-Si trong hợp kim được tính gần đúng bởi [19]

$$D_{Au-Si} = \sqrt{D_{Au-Au} D_{Si-Si}}, r_{0Au-Si} = \frac{1}{2}(r_{0Au-Au} + r_{0Si-Si}). \quad (46)$$

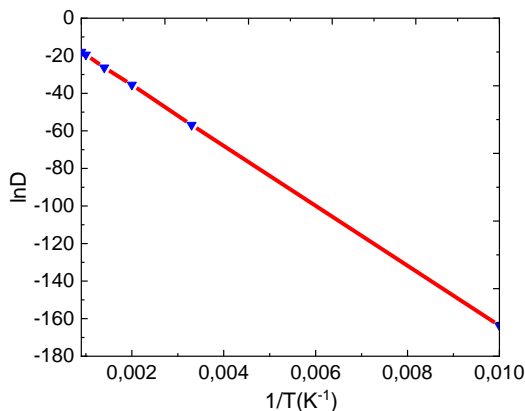
Chúng tôi tìm m_{Au-Si} và n_{Au-Si} bằng cách làm khớp các kết quả lí thuyết với số liệu thực nghiệm của môđun Young modulus của AuSi_{2%} tại nhiệt độ phòng. Các tính số đối với các đại lượng khuếch tán theo nhiệt độ, áp suất, nồng độ nguyên tử xen kẽ của hợp kim AuSi theo công thức (19) trong [17] đối với năng lượng kích hoạt E ; các công thức (17) - (20), (22), (24) trong [17] đối với hệ số trước hàm mũ D_0 ; các công thức (16), (21) trong [17] đối với hệ số khuếch tán D . Tính khoảng lân cận gần nhất đối với nguyên tử khuếch tán là nguyên tử xen kẽ Si tại 2 vị trí 1, 2 và sau đó tính độ dài bước nhảy hiệu dụng a_{eff} . Từ đó có thể xác định được các đại lượng khuếch tán. Các kết quả tính toán của chúng tôi được minh họa trên các hình từ Hình 1 - 6.



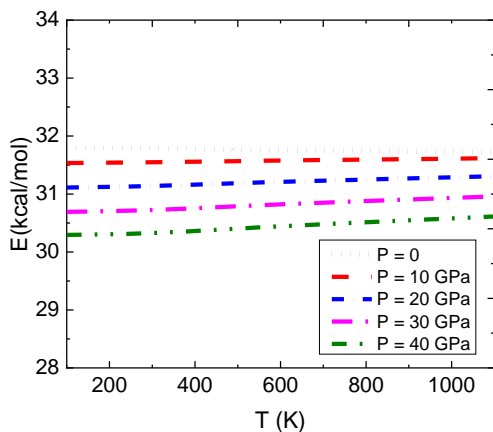
Hình 1. Sự phụ thuộc của độ dài bước nhảy hiệu dụng a_{eff} vào nhiệt độ đối với AuSi tại $c_{Si} = 2\%$, $P = 0$



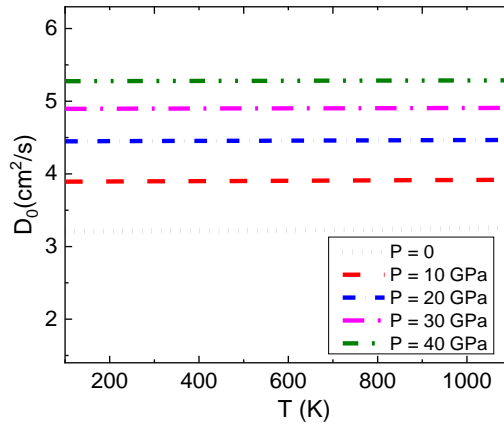
Hình 2. Sự phụ thuộc của hệ số trước hàm mũ D_0 vào nhiệt độ đối với AuSi tại $c_{Si} = 2\%$, $P = 0$



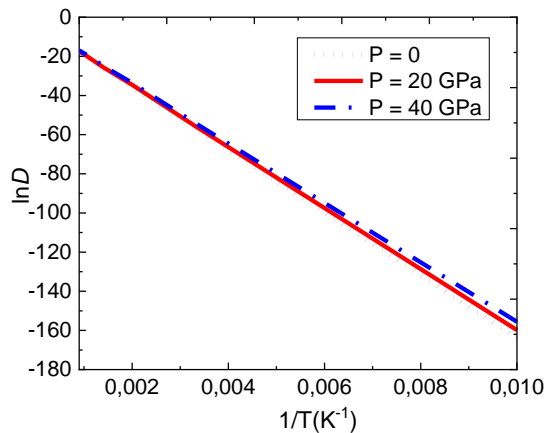
Hình 3. Sự phụ thuộc của lôga hệ số khuếch tán D vào nghịch đảo của nhiệt độ đối với AuSi tại $c_{Si} = 2\%$, $P = 0$



Hình 4. Sự phụ thuộc của năng lượng kích hoạt E vào nhiệt độ và áp suất đối với AuSi tại $c_{Si} = 2\%$



Hình 5. Sự phụ thuộc của hệ số trước hàm mũ D_0 vào nhiệt độ và áp suất đối với AuSi tại $c_{Si} = 2\%$



Hình 6. Sự phụ thuộc của lôga hệ số khuếch tán D vào nghịch đảo của nhiệt độ đối với AuSi tại $c_{Si} = 2\%$, $P = 0, 20$ và 40 GPa

Đối với AuSi ở cùng áp suất và nồng độ nguyên tử xen kẽ Si ví dụ như tại $c_{Si} = 2\%$ và $P = 40$ GPa, khi nhiệt độ tăng 100K đến 1100K, a_{eff} tăng từ $3,7895 \cdot 10^{-10}$ m tới $3,8148 \cdot 10^{-10}$ m, E tăng từ 30,2951 kcal/mol tới 30,612 kcal/mol, D_0 tăng từ $5,2764 \cdot 10^{-2}$ cm²/s tới $5,2865 \cdot 10^{-2}$ cm²/s và D tăng từ $2,7433 \cdot 10^{-8}$ cm²/s tới $4,3084 \cdot 10^{-8}$ cm²/s. Đối với AuSi ở cùng nhiệt độ và nồng độ nguyên tử xen kẽ Si ví dụ như tại $c_{Si} = 5\%$ và $T = 1000$ K, khi áp suất tăng từ 0 đến 40GPa, a_{eff} giảm từ $3,6949 \cdot 10^{-10}$ m tới $3,4483 \cdot 10^{-10}$ m, D_0 tăng từ $2,4793 \cdot 10^{-2}$ cm²/s tới $3,7923 \cdot 10^{-2}$ cm²/s và D tăng từ $1,4316 \cdot 10^{-8}$ cm²/s tới $4,8093 \cdot 10^{-8}$ cm²/s. Đối với AuSi ở cùng nhiệt độ và áp suất ví dụ như tại $P = 40$ Gpa và $T = 1000$ K, khi nồng độ nguyên tử xen kẽ Si tăng từ 0 đến 5%, a_{eff} tăng từ $3,4082 \cdot 10^{-10}$ m tới $3,4483 \cdot 10^{-10}$ m, D_0 tăng từ $3,7047 \cdot 10^{-2}$ cm²/s tới $3,7923 \cdot 10^{-2}$ cm²/s và D tăng từ $4,6981 \cdot 10^{-8}$ cm²/s tới $4,8093 \cdot 10^{-8}$ cm²/s. Hình 3 và Hình 6 chỉ ra sự phụ thuộc của $\ln D$ vào $1/T$ đối với hợp kim AuSi và có dạng một đường đơn điệu giảm. Điều đó có nghĩa là đối với hợp kim AuSi ở áp suất không và dưới tác dụng của áp suất trong khoảng nhiệt độ từ 100 đến 1100K, định luật Arrhenius hoàn toàn được thỏa mãn.

3. Kết luận

Chúng tôi đã tìm được biểu thức giải tích của hệ số khuếch tán phụ thuộc độ biến dạng và áp suất cùng với các đặc trưng cấu trúc và nhiệt động như số phối vị, tần số dao động mạng, khoảng lân cận gần nhất trung bình, nhiệt độ, nồng độ của các thành phần, năng lượng liên kết, năng lượng tự do Helmholtz, thế nhiệt động Gibbs, entropi tạo nút khuyết, thế tích kích hoạt nút khuyết, thế tích tạo nút khuyết, thế tích dịch chuyển nút khuyết và các đặc trưng khuếch tán như thừa số tương quan, độ dài bước nhảy hiệu dụng, tần số bước nhảy, năng lượng kích hoạt và hệ số trước hàm mũ đối với hợp kim xen kẽ AB với cấu trúc LPTD bằng phương pháp thống kê mômen. Các kết quả lí thuyết của bài báo này và bài báo trước đó [11] đã được tính số đối với hợp kim xen kẽ AuSi. Đối với AuSi ở cùng áp suất và nồng độ nguyên tử xen kẽ khi nhiệt độ tăng thì độ dài bước nhảy hiệu dụng, hệ số trước hàm mũ và hệ số khuếch tán đều tăng. Đối với AuSi ở cùng nhiệt độ và nồng độ nguyên tử xen kẽ, khi áp suất tăng thì độ dài bước nhảy hiệu dụng giảm, hệ số trước hàm mũ và hệ số khuếch tán đều tăng. Đối với AuSi ở cùng nhiệt độ và áp suất khi nồng độ nguyên tử xen kẽ tăng thì độ dài bước nhảy hiệu dụng, hệ số trước hàm mũ và hệ số khuếch tán đều tăng. Các kết quả tính toán của chúng tôi chỉ ra sự phụ thuộc tuyến tính của $\ln D$ vào $1/T$ đối với hợp kim AuSi. Điều đó có nghĩa là đối với AuSi ở áp suất không và dưới tác dụng của áp suất trong khoảng nhiệt độ từ 100 đến 1100K, định luật Arrhenius hoàn toàn được thỏa mãn.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] M.J. Aziz, 1997. Thermodynamics of diffusion under pressure and stress: Relation to point defect mechanisms. *Applied Physics Letters*, Vol. 70, No. 21, pp. 2810-2812.
- [2] V.Cherepanov V. and B. Voigtlander, 2004. Influence of material, surface reconstruction and strain on diffusion at the Ge (111) surface. *Physical Review B*, Vol.69, p. 1253311-1253318.
- [3] A. Yu. Kuznetsov, J.Cardenas, D.C.Schmidt, B.G.Svenson, J. L. Hansen and A. N. Larsen, 1999. Sb-enhanced diffusion in strained $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$: Dependence on biaxial compression. *Physical Review B*, Vol. 59, No.11, pp. 7274-7277.
- [4] J. H. Cleveland, 1951. *Atom movements*, Ed. Hollonom.
- [5] O.P. Manley and S.A. Rice, 1960. Dynamical theory of diffusion in crystals. *Physical Review*, Vol. 117, No. 3, p. 632.
- [6] S.A. Rice, 1958. Dynamical theory of diffusion in crystals. *Physical Review*, Vol. 112, pp. 804-811.
- [7] V. V. Hung, H. V. Tich and K. Masuda-Jindo, 2000. Study of self-diffusion in metals by statistical moment method: Anharmonic effects. *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 69, No. 8. pp. 2691-2699.
- [8] N.Q.Hoc, B.D.Tinh, D.Q.Vinh and L.H.Viet, 2016. Diffusion of interstitial atoms in interstitial alloys FeSi and FeH with BCC structure under pressure. *The Metropolitan University's Journal of Science, Natural Science and Technology*, No. 8, pp. 48-56.
- [9] N.Q.Học, Đ.Q.Vinh, L.H.Việt và N.V.Phương, 2016. Nghiên cứu lí thuyết khuếch tán của hợp kim xen kẽ AB với cấu trúc lập phương tâm khối. *Journal of Science of HNUE, Natural Sciens*, Vol. 61, Issue 4, pp. 3-9.
- [10] N.Q.Học, N.Đ.Hiền và N.H.Nhung, 2020. Nghiên cứu lí thuyết khuếch tán của hợp kim thay thế AB xen kẽ nguyên tử C với cấu trúc LPTK. *HNUE Journal of Science, Natural Sciences*, Vol. 65, Issue 3, pp. 31-38.

- [11] N.Q.Hoc, P.T.T.Loan, N.T.Viet and N.N.Le, 2020. The diffusion in FCC binary interstitial alloy. *HNUE Journal of Science, Natural Sciences*, Vol. 65, Issue 10, pp. 18-23.
- [12] M. J. Aziz, 1998. Pressure and stress effects on diffusion in Si. *Defect and diffusion Forum*, Vol. 153-155, pp. 1-10.
- [13] V. V. Hung, D. D. Thanh and N. T. Hoa, 2007. Effect of Stress on Defect Diffusion in Metals. *HNUE Journal of Science* No. 1, pp. 13-18.
- [14] J. Johansson and S. Toxvaerd, 2004. Ad atom diffusion on strained (111) surfaces: A molecular dynamics study. *Physical Review B*, Vol. 69, No. 23, p. 233401.
- [15] N. T. Hoa, N. Q. Hoc, G. Coman, T. D. Cuong and L. H. Viet, 2019. Thermodynamic property of FCC interstitial alloy with defects. *Proc.of the 8th International Conference on Material Science and Engineering (UGALMAT 2018)*, 11 – 13 October, 2018, “Dunarea de Jos” University of Galati, Romania, *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, Vol.485, article ID 012018.
- [16] R. N. Jeffery and D. Lazarus, 1970. Calculating activation volumes and activation energies from diffusion measurements. *Journal of Applied. Physics*, Vol. 41, pp. 3186-3187.
- [17] M. N. Magomedov, 1987. On calculating the Debye temperature and the Gruneisen parameter, *Zhurnal Fizicheskoi Khimii*, Vol. 61, No. 4, pp.1003-1009 (in Russian).
- [18] M. N. Magomedov, 2006. The calculation of the parameters of the Mie-Lennard-Jones potential, *High Temperature*, Vol. 44, No. 4, pp. 513-529.
- [19] R. J. Good and C. J. Hope, 1970. *The Journal of Chemical Physics*, Vol. 53, No. 2, pp. 540-543.

ABSTRACT

Study on the diffusion of interstitial atom in interstitial alloy AuSi with FCC structure

Nguyen Quang Hoc¹, Nguyen Duc Hien², Nguyen Ngoc Le¹, Vu Thuy Linh¹,
Pham Huyen Trang¹ and Le Hong Viet³

¹*Faculty of Physics, Hanoi National University of Education*

²*Mac Dinh Chi High School, Chu Pah District, Gia Lai Province*

³*Faculty of Natural Science, Tran Quoc Tuan University*

The paper derives analytic expressions of the diffusion coefficient depending on strain and pressure for the interstitial alloy AB with FCC structure by the statistical moment method based on previous studies for metals and semiconductors. Theoretical results are applied to alloy AuSi. Our numerical results satisfy the Arrhenius law

Keywords: interstitial alloy, diffusion coefficient, strain, pressure, AuSi, Arrhenius law, statistical moment method.