

Расчет энергии упорядочения сплава Cu_3Au по формуле Каули

В.М.Силонов¹, Л.Энхтур^{2*}, Х.Балт-Эрдэнэ², Н.Тувжаргал², Р.Галбадрах², Х.Цоохуу²

¹ Московский Государственный Университет, Физический факультет, кафедра физики твердого тела

² Монгольский Государственный Университет, Физический факультет, кафедра общей физики

*Э-почта enkhtorum@yahoo.com

С использованием спектра параметров ближнего порядка, экспериментально определенных из диффузного рассеяния рентгеновских лучей, по формулам Каули с учетом первых 11 координационных сфер рассчитаны значения энергии упорядочения сплава Cu_3Au . Результаты расчета согласуются с результатами других исследователей.

I. ВВЕДЕНИЕ

В рамках статистической теории ближнего порядка методом самосогласованного поля Ж.М.Каули вывел формулу связывающую параметры ближнего порядка со значениями энергии упорядочения [1-3]:

$$-2 \sum_n \alpha_n V_{nn'} - k_B T \ln \left(1 + \frac{\alpha_n}{c_A c_B (1 - \alpha_n)^2} \right) = 0, \quad (1)$$

где α_n -параметр ближнего порядка на n -ом узле решетки по отношению к центральному атому, $\alpha_{n'}$ - параметр ближнего порядка на n' -том узле решетки, отсчитанном от n -го узла, $V_{nn'}$ -энергия упорядочения на n' -том узле решетки, также отсчитанном от n -го узла, k_B - постоянная Больцмана, c_A и c_B – концентрации компонент сплава, T - абсолютная температура. По этой формуле в [1] рассчитаны значения энергии упорядочения сплава Cu_3Au на первых трех координационных сферах: $V_1=358k_B$, $V_2=-34k_B$, $V_3=-19k_B$. В [4] формула (1) расписана для сплава Cu_3Au с учетом первых четырех координационных сфер, начиная от центрального атома. Согласно [4] с использованием значений параметров ближнего порядка на первых четырех координационных сферах методом наименьших квадратов были рассчитаны значения энергии упорядочения сплава Ni бат.%Al на первых четырех координационных сферах [5], с применением которых рассчитали температуру упорядочения сплава Ni_3Al , принятую вполне разумной. Здесь же отметили, что абсолютные значения энергии упорядочения для сплава Ni-Al велики и примерно вдвое больше, чем для сплава Cu-Au.

Корреляция между Фурье-образами

параметра ближнего порядка и парного межатомного потенциала для некоторых двойных разупорядоченных сплавов была исследована в [6-8] с целью объяснения экспериментальных данных диффузного рассеяния рентгеновских лучей, тепловых нейтронов и электронов [6-8]. В [8] с целью минимизации суммы квадратов разностей между экспериментальными и теоретическими значениями параметров ближнего порядка сплавов Cu-Au на первых восьми координационных сферах варьировали отношения V_2/V_1 и V_3/V_1 , где V_1, V_2, V_3 есть значения энергии межатомного парного взаимодействия на первых трех координационных сферах. Для Cu_3Au при $V_2/V_1 = -0,230$ и $V_3/V_1 = -0,015$ теоретически получили спектр параметров ближнего порядка, хорошо описывающий экспериментальный спектр. Анализируя таким образом систему Cu-Au, авторы [8] пришли к выводу, что межатомный потенциал в этой системе имеет осциллирующий характер при учете парного взаимодействия на третьей координационной сфере.

Дальнодействующий характер межатомного парного взаимодействия в сплаве Cu_3Au был выявлен в [9] по методике схожей с [8] при использовании значений параметров ближнего порядка на первых одиннадцати координационных сферах, экспериментально измеренных в [10]. С применением спектра рассчитанных значений V_i/V_1 ($i=2, \dots, 8$) была построена кривая зависимости парного межатомного потенциала от межатомного расстояния, которая имеет осциллирующий характер [9].

Целью настоящей работы является применение формулы Каули (1) в расчете энергии упорядочения сплава Cu_3Au с учетом межатомного взаимодействия на первых

одинадцати координационных сферах.

II. МЕТОДИКА РАСЧЕТА

С целью выявления дальнедействующего характера энергии упорядочения взяли из [11] экспериментальные значения параметров ближнего порядка сплава Cu_3Au на первых одинадцати координационных сферах и расписали формулу (1) для одинадцати сфер межатомного взаимодействия:

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_1}{c_A c_B 1 - \alpha_1} = V_1(1 + 4\alpha_1 + 2\alpha_2 + 4\alpha_3 + 4\alpha_4) + V_2(2\alpha_1 + 2\alpha_3 + 2\alpha_5) + V_3(4\alpha_1 + 2\alpha_2 + 4\alpha_3 + 4\alpha_4 + 4\alpha_5 + 2\alpha_6 + 4\alpha_7) + V_4(\alpha_1 + 4\alpha_3 + 2\alpha_5 + 4\alpha_7 + \alpha_9) + V_5(2\alpha_2 + 4\alpha_3 + 2\alpha_4 + 4\alpha_5 + 4\alpha_7 + 2\alpha_8 + 4\alpha_{10} + 2\alpha_{11}) + V_6(2\alpha_3 + 4\alpha_7) + V_7(4\alpha_3 + 4\alpha_4 + 4\alpha_5 + 4\alpha_6 + 8\alpha_7 + 4\alpha_9 + 4\alpha_{10} + 4\alpha_{11}) + V_8(2\alpha_5 + 2\alpha_{10}) + V_9(\alpha_4 + 4\alpha_7 + 2\alpha_{11}) + V_{10}(4\alpha_5 + 4\alpha_7 + 2\alpha_8 + 4\alpha_{11}) + V_{11}(2\alpha_5 + 4\alpha_7 + 2\alpha_9 + 4\alpha_{10});$$

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_2}{c_A c_B 1 - \alpha_2} = V_1(4\alpha_1 + 4\alpha_3 + 4\alpha_5) + V_2(1 + 4\alpha_4 + \alpha_8) + V_3(4\alpha_1 + 8\alpha_3 + 8\alpha_7 + 4\alpha_{10}) + V_4(4\alpha_2 + 4\alpha_6 + 4\alpha_{11}) + V_5(4\alpha_1 + 4\alpha_5 + 8\alpha_7 + 4\alpha_9) + 4\alpha_4 V_6 + V_7(8\alpha_3 + 8\alpha_5 + 8\alpha_7) + V_8(\alpha_2 + 4\alpha_{11}) + 4\alpha_5 V_9 + V_{10}(4\alpha_3 + 8\alpha_{10}) + V_{11}(4\alpha_4 + 4\alpha_8);$$

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_3}{c_A c_B 1 - \alpha_3} = V_1(2\alpha_1 + \alpha_2 + 2\alpha_3 + 2\alpha_4 + 2\alpha_5 + \alpha_6 + 2\alpha_7) + V_2(\alpha_1 + 2\alpha_3 + 2\alpha_7 + \alpha_{10}) + V_3(1 + 2\alpha_1 + 2\alpha_2 + 2\alpha_3 + \alpha_4 + 4\alpha_5 + 4\alpha_7 + \alpha_8 + 2\alpha_9 + 2\alpha_{11}) + V_4(2\alpha_1 + \alpha_3 + 2\alpha_5 + 2\alpha_7 + 2\alpha_{11}) + V_5(2\alpha_1 + 4\alpha_3 + 2\alpha_4 + 2\alpha_6 + 2\alpha_7 + 2\alpha_{10} + 2\alpha_{11}) + V_6(\alpha_1 + 2\alpha_5 + \alpha_9 + \alpha_{10}) + V_7(2\alpha_1 + 2\alpha_2 + 4\alpha_3 + 2\alpha_4 + 2\alpha_5 + 6\alpha_7 + 2\alpha_8 + 2\alpha_{10} + 4\alpha_{11}) + V_8(\alpha_3 + 2\alpha_7) + V_9(2\alpha_3 + \alpha_6 + 2\alpha_{10}) + V_{10}(\alpha_2 + 2\alpha_4 + 2\alpha_5 + \alpha_6 + 2\alpha_7 + 2\alpha_9) + V_{11}(2\alpha_3 + 2\alpha_5 + 4\alpha_7);$$

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_4}{c_A c_B 1 - \alpha_4} = V_1(\alpha_1 + 4\alpha_3 + 2\alpha_5 + 4\alpha_7 + \alpha_9) + V_2(2\alpha_2 + 2\alpha_6 + 2\alpha_{11}) + V_3(4\alpha_1 + 2\alpha_3 + 4\alpha_5 + 4\alpha_7 + 4\alpha_{10}) + V_4(1 + 4\alpha_4 + 2\alpha_8) + V_5(2\alpha_1 + 4\alpha_3 + 2\alpha_5 + 4\alpha_7) + V_6(2\alpha_2 + 4\alpha_{11}) + V_7(4\alpha_1 + 4\alpha_3 + 4\alpha_5 + 4\alpha_7 + 4\alpha_9 + 4\alpha_{10}) + 2V_8\alpha_4 + V_9(\alpha_1 + 4\alpha_7) + V_{10}(4\alpha_3 + 4\alpha_7 + 2\alpha_{10}) + V_{11}(2\alpha_2 + 4\alpha_6 + 6\alpha_{11});$$

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_5}{c_A c_B 1 - \alpha_5} = V_1(\alpha_2 + 2\alpha_3 + \alpha_4 + 2\alpha_5 + 2\alpha_7 + \alpha_8 + 2\alpha_{10} + \alpha_{11}) + V_2(\alpha_1 + \alpha_5 + 2\alpha_7 + \alpha_9) + V_3(2\alpha_1 + 4\alpha_3 + 2\alpha_4 + 2\alpha_6 + 2\alpha_7 + 2\alpha_{10} + 2\alpha_{11}) + V_4(\alpha_1 + 2\alpha_3 + \alpha_5 + 2\alpha_7) + V_5(1 + 2\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_4 + 4\alpha_7 + 2\alpha_9 + 2\alpha_{11}) + V_6(2\alpha_3 + 2\alpha_7) + V_7(2\alpha_1 + 2\alpha_2 + 2\alpha_3 + 2\alpha_4 + 4\alpha_5 + 2\alpha_6 + 4\alpha_7 + 2\alpha_{10}) + V_8(\alpha_1 + \alpha_9) + V_9(\alpha_2 + 2\alpha_5 + \alpha_8) + V_{10}(2\alpha_1 + 2\alpha_3 + 2\alpha_7 + 2\alpha_{11}) + V_{11}(\alpha_1 + 2\alpha_3 + 2\alpha_5 + 2\alpha_{10});$$

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_6}{c_A c_B 1 - \alpha_6} = V_1(3\alpha_3 + 6\alpha_7) + 3\alpha_4 V_2 + V_3(3\alpha_1 + 6\alpha_5 + 3\alpha_9 + 3\alpha_{10}) + V_4(3\alpha_2 + 6\alpha_{11}) + V_5(6\alpha_3 + 6\alpha_7) + V_6(1 + 3\alpha_8) + V_7(6\alpha_1 + 6\alpha_5 + 6\alpha_{10}) + 3\alpha_6 V_8 + 3\alpha_3 V_9 + V_{10}(3\alpha_3 + 6\alpha_7) + 6\alpha_4 V_{11};$$

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_7}{c_A c_B 1 - \alpha_7} = V_1(\alpha_3 + \alpha_4 + \alpha_5 + \alpha_6 + 2\alpha_7 + \alpha_9 + \alpha_{10} + \alpha_{11}) + V_2(\alpha_3 + \alpha_5 + \alpha_7) + V_3(\alpha_1 + \alpha_2 + 2\alpha_3 + \alpha_4 + \alpha_5 + 3\alpha_7 + \alpha_8 + \alpha_{10} + 2\alpha_{11}) + V_4(\alpha_1 + \alpha_3 + \alpha_5 + \alpha_7 + \alpha_9 + \alpha_{10}) + V_5(\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3 + \alpha_4 + 2\alpha_5 + \alpha_6 + 2\alpha_7 + \alpha_{10}) + V_6(\alpha_1 + \alpha_5 + \alpha_{10}) + V_7(1 + 2\alpha_1 + \alpha_2 + 3\alpha_3 + \alpha_4 + 2\alpha_5 + 2\alpha_7 + \alpha_8 + \alpha_9 + 2\alpha_{10} + 3\alpha_{11}) + V_8(\alpha_3 + \alpha_7) + V_9(\alpha_1 + \alpha_4 + \alpha_7 + \alpha_{11}) + V_{10}(\alpha_1 + \alpha_3 + \alpha_4 + \alpha_5 + \alpha_6 + 2\alpha_7 + \alpha_{11}) + V_{11}(\alpha_1 + 2\alpha_3 + 3\alpha_7 + \alpha_9 + \alpha_{10});$$

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_8}{c_A c_B 1 - \alpha_8} = V_1(4\alpha_5 + 4\alpha_{10} + 4\alpha_{14}) + V_2(\alpha_2 + 4\alpha_{11}) + V_3(4\alpha_3 + 8\alpha_7) + 4\alpha_4 V_4 + V_5(4\alpha_1 + 4\alpha_9) + 4\alpha_6 V_6 + V_7(8\alpha_3 + 8\alpha_7) + V_8(1 + 4\alpha_{16}) + 4\alpha_5 V_9 + 4\alpha_1 V_{10} + V_{11}(4\alpha_2 + 4\alpha_{11});$$

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_9}{c_A c_B 1 - \alpha_9} = V_1(\alpha_4 + 7\alpha_7 + 2\alpha_{11}) + 2\alpha_5 V_2 + V_3(4\alpha_3 + 2\alpha_6 + 4\alpha_{10}) + V_4(\alpha_1 + 4\alpha_7) + V_5(2\alpha_2 + 4\alpha_5 + 2\alpha_8) + 2\alpha_3 V_6 + V_7(4\alpha_1 + 4\alpha_4 + 4\alpha_7 + 4\alpha_{11}) + 2\alpha_5 V_8 + V_9(1 + 4\alpha_9) + V_{10}(4\alpha_3 + 4\alpha_{10}) + V_{11}(2\alpha_1 + 4\alpha_7);$$

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_{10}}{c_A c_B 1 - \alpha_{10}} = V_1(2\alpha_5 + 2\alpha_7 + \alpha_8 + 2\alpha_{11}) + V_2(\alpha_3 + 2\alpha_{10}) + V_3(\alpha_2 + 2\alpha_4 + 2\alpha_5 + \alpha_6 + 2\alpha_7 + 2\alpha_9) + V_4(2\alpha_3 + 2\alpha_7 + \alpha_{10}) + V_5(2\alpha_1 + 2\alpha_3 + 2\alpha_7 + 2\alpha_{11}) + V_6(\alpha_3 + 2\alpha_7) + V_7(2\alpha_1 + 2\alpha_3 + 2\alpha_4 + 2\alpha_5 + 2\alpha_6 + 4\alpha_7 + 2\alpha_{11}) + V_8(\alpha_1 + 2\alpha_{14} + 2\alpha_{21} + \alpha_{33}) + V_9(2\alpha_3 + 2\alpha_{10}) + V_{10}(1 + 2\alpha_2 + \alpha_4 + 4\alpha_9) + V_{11}(2\alpha_1 + 2\alpha_5 + 2\alpha_7);$$

$$\frac{kT}{2} \ln 1 + \frac{\alpha_{11}}{c_A c_B 1 - \alpha_{11}} = V_1(\alpha_5 + 2\alpha_7 + \alpha_9 + 2\alpha_{10}) + V_2(\alpha_4 + \alpha_8) + V_3(2\alpha_3 + 2\alpha_5 + 4\alpha_7) + V_4(\alpha_2 + 2\alpha_6 + 3\alpha_{11}) + V_5(\alpha_1 + \alpha_3 + 2\alpha_5 + 2\alpha_{10}) + 2\alpha_4 V_6 + V_7(2\alpha_1 + 4\alpha_3 + 6\alpha_7 + 2\alpha_9 + 2\alpha_{10}) + V_8(\alpha_2 + \alpha_{11}) + V_9(\alpha_1 + 2\alpha_7) + V_{10}(2\alpha_1 + 2\alpha_5 + 2\alpha_7) + V_{11}(1 + 3\alpha_4 + \alpha_8). \quad (2)$$

Расчеты энергии упорядочения на первых одинадцати координационных сферах проводили подобно [5] методом наименьших квадратов. Значения параметров ближнего порядка α_i и результаты расчетов энергии упорядочения V_i сплава Cu_3Au , соответствующие температуре $T = 678\text{K}$ приведены в Таблице 1. Из данных таблицы видно, что наши значения энергии упорядочения на первых трех сферах похожи с вышеприведенными результатами [1]. Отношения $V_2/V_1 = -0.027$ и $V_3/V_1 = -0.111$

лишь по знаку соответствуют отношениям из [8].

Таблица 1. Значения параметров ближнего порядка α_i и энергии упорядочения V_i сплава Cu_3Au , соответствующие $T = 678K$.

I	$l m n$	α_i	V_i / k_B
1	110	-0,152	326,20
2	200	0,186	-8,65
3	211	0,009	-36,36
4	220	0,095	-52,66
5	310	-0,053	17,36
6	222	0,025	-10,38
7	321	-0,016	2,71
8	400	0,048	-1,48
9	330	-0,026	-10,25
10	411	0,011	10,74
11	420	0,026	8,55

Из Таблицы 1 видно, что значения энергии упорядочения на первых восьми сферах по знаку противоположны значениям параметров ближнего порядка, что свидетельствует о стабилизирующей роли ближнего порядка для сплава Cu_3Au .

III. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Применение формулы Каули (1) позволяет рассчитать спектр энергии упорядочения V_i , между тем по методике предложенной в работах [6-9] можно рассчитать отношения V_i/V_1 ($i = 2, \dots, 8$). Судя спектру энергии упорядочения на 11 координационных сферах, можно сделать вывод о дальнедействии межатомного потенциала.

Результаты расчетов, проведенных в данной работе указывают на возможность применения формул Каули для исследования упорядочения в двойных сплавах.

Благодарность

Авторы выражают благодарность Фонду Науки и Технологии Монголии при Правительстве Монголии и Монголо-Беларускому совместному проекту “Физико-химический, мультифрактальный и микроструктурный анализ углеродных материалов для их рационального использования в промышленности” за финансовую поддержку.

ЛИТЕРАТУРА

1. J.M.Cowley, Phys.Rev. **77**, 669(1950)
2. J.M.Cowley, Phys.Rev. **120**, 1648 (1960)
3. J.M.Cowley, Phys.Rev. A **138**, 1384 (1965)
4. В.И.Иверонова, А.А.Кацнельсон, Ближний порядок в твердых растворах, М.1977.
5. А.А.Кацнельсон, Дажаев П.Ш. ФММ, т.37, вып.3, стр.625 (1974)
6. P.C.Clapp, S.C.Moss, Phys.Rev. **142**, N2, 418 (1966)
7. P.C.Clapp, S.C.Moss, Phys.Rev. **171**, N3, 754 (1968)
8. P.C.Clapp, S.C.Moss, Phys.Rev. **171**, N3, 764 (1968)
9. S. Wilkins, Phys.Rev. B **2**, N10, 3935 (1970)
10. S.C.Moss, J.Appl.Phys. 35, 3547 (1964)
11. J.M.Cowley, J.Appl.Phys. 21, 24 (1950)

Cu_3Au хайлшийн эрэмблэлтийн энергийг Каулийн томъёогоор тооцоох нь

В.М.Силонов¹, Л.Энхтөр², Х.Балт-Эрдэнэ², Н.Төвжаргал², Р.Галбадрах², Х.Цоохүү²

¹ Москвагийн Их Сургууль, Физикийн факультет, Хатуу биеийн физикийн тэнхим
² Монгол Улс, Улаанбаатар-210646, Их сургуулийн гудамж-1, Монгол Улсын Их Сургууль, Физик электроникийн сургууль, Ерөнхий физикийн тэнхим

Рентген цацрагийн диффузийн сарнилын туршилтаар тодорхойлсон ойрын эрэмбийн параметрийн утгуудыг ашиглан 11 сферийн хувьд бичсэн Каулийн томъёоны дагуу хамгийн бага квадратын аргаар Cu_3Au хайлшийн эрэмблэлтийн энергийг тооцоолсон нь бусад судлаачдын үр дүнтэй нийцэж байна.

The calculation of ordering energy on Cu_3Au alloy by Cowley formula

V.M.Silinov¹, L.Enkhtur², Kh.Balt-Erdene², N.Tuvjargal², R.Galbadrakh², Kh.Tsookhuu²

¹ Department of Solid State Physics, Faculty of Physics, Moscow State University,

² Department of General Physics, School of Physics and Electronics, National University of Mongolia,
University Street-1, Ulaanbaatar-210646, Mongolia

Using the Cowley formula written for 11 coordination spheres by least square method we calculated ordering energy on Cu_3Au alloy via the short range order parameters defined from X-ray diffuse scattering. Our results are in agreement with results of other authors.