

SỰ KHUẾCH TÁN TRONG CÁC KIM LOẠI Au, Cu VÀ CÁC HỢP KIM XEN KẼ AuSi, CuSi

Nguyễn Quang Học¹, Nguyễn Đức Hiền², Nguyễn Thị Hòa^{3,*},
Lê Lan Hương¹ và Nguyễn Ngọc Lê¹

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

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

³*Trường Đại học Giao thông vận tải*

Tóm tắt. Bài báo thực hiện tính số đối với thể tích kích hoạt, năng lượng kích hoạt, hệ số trước hàm mũ và hệ số khuếch tán đối với các kim loại Au, Cu và các hợp kim xen kẽ AuSi, CuSi trong khoảng nồng độ nguyên tử xen kẽ từ 0 đến 4%, trong khoảng nhiệt độ từ 700 đến 1873 K, trong khoảng áp suất từ 0 đến 180 GPa và trong khoảng độ biến dạng từ 0 đến 5%. Bài báo xác định sự phụ thuộc của hệ số khuếch tán vào áp suất và độ biến dạng đối với các kim loại và hợp kim nói trên. Kết quả tính số bằng SMM đã chứng tỏ rằng định luật Arrhenius được nghiệm đúng đối với kim loại và hợp kim xen kẽ tại các áp suất và nồng độ nguyên tử xen kẽ khác nhau. Các kết quả tính số bằng phương pháp thống kê mômen (SMM) đối với Au ở $T = 1000$ K và $T = 1250$ K và áp suất không phù hợp tốt với thực nghiệm đối với năng lượng kích hoạt (sai số dưới 10%) và phù hợp về bậc độ lớn đối với hệ số trước hàm mũ và hệ số khuếch tán. Các kết quả tính số hệ số khuếch tán bằng SMM đối với Au trong khoảng từ 977 đến 1321 K và đối với Cu trong khoảng từ 933,95 đến 1336,15 K được so sánh với thực nghiệm và tính toán khác và cho sự phù hợp khá tốt về bậc độ lớn. Các kết quả tính số thể tích kích hoạt bằng SMM đối với Au và Cu phù hợp tốt với các tính toán khác. Các kết quả tính số bằng SMM đối với các đại lượng khuếch tán của các hợp kim xen kẽ AuSi, CuSi ở các nhiệt độ, áp suất, ứng suất và nồng độ nguyên tử xen kẽ khác nhau có tính dự báo, định hướng cho các thực nghiệm trong tương lai.

Từ khóa: hợp kim xen kẽ, năng lượng kích hoạt, hệ số trước hàm mũ, hệ số khuếch tán, thể tích kích hoạt, ứng suất, phương pháp thống kê mômen.

1. Mở đầu

Các silicua như AuSi và CuSi thu hút sự quan tâm của các nhà nghiên cứu trong những năm gần đây do các ứng dụng chức năng và các tính chất vật lý dị thường của chúng. Silicua vàng là một trong nhiều hợp kim kim loại được bán bởi American Elements dưới tên thương mại là AE AlloysTM. Các hợp kim này có sẵn dưới dạng thỏi, thanh, ruy băng, dây, tấm và lá. Các dạng có độ tinh khiết siêu cao và độ tinh khiết cao cũng bao gồm bột kim loại, bột micrômet, kích thước nano, bia để ngưng kết màng mỏng và viên nén cho các ứng dụng lắng đọng hơi hóa học (CVD) và lắng đọng hơi vật lý (PVD). Các ứng dụng chính bao gồm lắp ráp ô trục, chấn lưu, đúc, hàn bước và che chắn bức xạ.

Ngày nhận bài: 13/2/2021. Ngày sửa bài: 18/3/2022. Ngày nhận đăng: 28/3/2022.

Tác giả liên hệ: Nguyễn Thị Hòa. Địa chỉ e-mail: nthoaly@utc.edu.vn

Có nhiều kết quả nghiên cứu lí thuyết và thực nghiệm về các đặc trưng khuếch tán như năng lượng kích hoạt, hệ số trước hàm mũ và hệ số khuếch tán của các kim loại Au, Cu và các hợp kim xen kẽ AuSi, CuSi với cấu trúc lập phương tâm diện (LPTD) chẳng hạn như trong các công trình [1-13].

Phương pháp thống kê mômen (SMM) đã được áp dụng để nghiên cứu sự khuếch tán của các hợp kim xen kẽ nhị nguyên, hợp kim tam nguyên vừa thay thế vừa xen kẽ với các cấu trúc LPTD và lập phương tâm khối (LPTK) trong các công trình trước đây của chúng tôi [14-18]. Trong bài báo gần đây [17], chúng tôi xây dựng lí thuyết khuếch tán cho hợp kim xen kẽ nhị nguyên với cấu trúc LPTD, trong đó chúng tôi rút ra biểu thức giải tích của năng lượng tự do Helmholtz, khoảng lân cận gần nhất giữa hai nguyên tử, năng lượng liên kết và các thông số hợp kim đối với nguyên tử xen kẽ cùng với các đặc trưng khuếch tán như tần số bước nhảy, độ dài bước nhảy hiệu dụng, thừa số tương quan, năng lượng kích hoạt, hệ số trước hàm mũ và hệ số khuếch tán đối với hợp kim xen kẽ với cấu trúc LPTD dưới tác dụng của áp suất. Trong bài báo [18], chúng tôi tìm được sự phụ thuộc của hệ số khuếch tán vào ứng suất, độ biến dạng và áp suất đối với loại hợp kim này.

Trong bài báo này, trên cơ sở kết quả lí thuyết của các bài báo [17,18] chúng tôi tính toán năng lượng kích hoạt và hệ số khuếch tán của các kim loại Au, Cu và các hợp kim xen kẽ AuSi, CuSi có cấu trúc LPTD ở các nhiệt độ khác nhau từ hàng trăm độ K đến gần nhiệt độ nóng chảy ở áp suất không và dưới tác dụng của áp suất và độ biến dạng.

2. Nội dung nghiên cứu

Để nghiên cứu các kim loại Au, Cu và các hợp kim xen kẽ AuSi, CuSi, chúng tôi sử dụng thể tương tác cặp Mie-Lennard-Jones (MLJ) $m-n$ [19]

$$\varphi(r) = \frac{D}{n-m} \left[m \left(\frac{r_0}{r} \right)^n - n \left(\frac{r_0}{r} \right)^m \right], \quad (1)$$

trong đó r_0 là khoảng cách giữa hai nguyên tử tương ứng với thế năng cực tiểu lấy giá trị - D , m , n là các số có giá trị khác nhau đối với các nguyên tử kim loại khác nhau và được xác định bằng con đường kinh nghiệm dựa trên cơ sở số liệu thực nghiệm. Các thông số thể MLJ đối với các tương tác Au-Au, Cu-Cu, Si-Si được cho trong Bảng 1. Các thông số thể đối với các tương tác Au-Si, Cu-Si được xác định bởi [21].

Bảng 1. Các thông số thể Mie-Lennard-Jones đối với các tương tác Au-Au, Cu-Cu và Si-Si

Tương tác	$D/k_B(\text{K})$	r_0 (10^{-10} m)	m	N
Au-Au [20]	7411,5	2,8751	1,96	15,56
Cu-Cu [20]	6841,3	2,5487	3,03	8,37
Si-Si [19]	32701,7	2,295	6	12

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

Chúng tôi tìm $m_{\text{Au-Si}}$, $n_{\text{Au-Si}}$, $m_{\text{Cu-Si}}$ và $n_{\text{Cu-Si}}$ bằng cách làm khớp kết quả lí thuyết với số liệu thực nghiệm mô đun Young của các hợp kim AuSi_{3%} và CuSi_{3%} tại nhiệt độ phòng.

Các kết quả tính toán của hệ số trước hàm mũ D_0 , năng lượng kích hoạt Q và hệ số khuếch tán D của các kim loại Au và Cu được trình bày trong các bảng từ Bảng 2 tới Bảng 3 và được minh họa bằng đồ thị trên Hình 1 và Hình 2.

Bảng 2. Hệ số D_0 (cm²s⁻¹), năng lượng kích hoạt Q (kcal.mol⁻¹) và hệ số khuếch tán D (cm²s⁻¹) tại $T = 1000$ K và $T = 1250$ K, $P = 0$ đối với Au tính bởi SMM và các thực nghiệm [1-5]

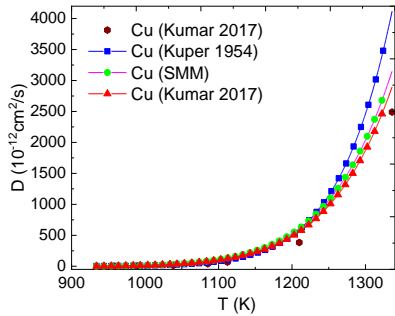
Nguồn	D_0	Q	$D(1000K)$	$D(1250K)$
SMM (bài báo này)	0,13	41,76	$9,76.10^{-11}$	$7,68.10^{-9}$
TN của Sagrubskaa (1937) [1]	0,16	53,0	$4,14.10^{-14}$	$8,52.10^{-11}$
TN của McKay (1938) [2]	2,10	50,3	$2,02.10^{-11}$	$3,23.10^{-9}$
Tính toán của McKay (1938) [2]	0,050	40,8	$5,97.10^{-11}$	$3,64.10^{-9}$
TN của Gatos and Kurtz (1954) [3]	0,265	45,3	$3,32.10^{-11}$	$3,18.10^{-9}$
TN của Okkerse (1956) [4]	0,031	39,4	$7,58.10^{-11}$	$4,00.10^{-9}$
TN1 của Makin <i>et al.</i> (1957) [5]	0,087	41,65	$6,86.10^{-11}$	$4,54.10^{-9}$
TN2 của Makin <i>et al.</i> (1957) [5]	0,091	41,7	$6,99.10^{-11}$	$4,65.10^{-9}$

Bảng 2 đưa ra các giá trị tính toán SMM của hệ số trước hàm mũ D_0 , năng lượng kích hoạt Q và hệ số khuếch tán D của các kim loại Au và Cu, năng lượng kích hoạt Q và hệ số khuếch tán D của các kim loại Au và Cu ở nhiệt độ gần nhiệt độ nóng chảy và áp suất không. Các kết quả này được so sánh với số liệu thực nghiệm [1-5] và tính toán khác [2]. Hầu hết các kết quả tính năng lượng kích hoạt Q bởi SMM phù hợp tốt với thực nghiệm (sai số đều dưới 10%). Đối với hệ số trước hàm mũ D_0 , sai số giữa tính toán SMM với thực nghiệm lớn hơn so với sai số đối với năng lượng kích hoạt Q . Các giá trị D_0 thu được của chúng tôi đều lớn hơn giá trị thực nghiệm. Lưu ý rằng các kết quả tính D_0 bằng SMM sẽ phù hợp với thực nghiệm hơn nếu kể đến sự phụ thuộc nhiệt độ của thừa số tương quan f (cụ thể là f sẽ giảm khi nhiệt độ tăng). Điều đó dẫn đến sự giảm đáng kể của D_0 .

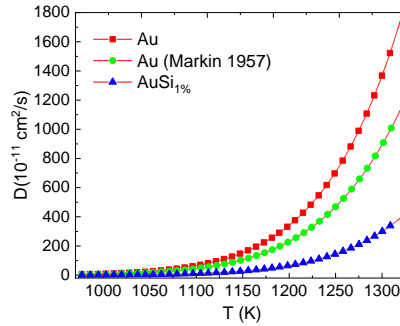
Bảng 3. Hệ số khuếch tán $D(T, c_{Si})$ (cm²s⁻¹) của Cu, CuSi tại $P = 0$ được tính bởi SMM và Kumar (2017) [6] và từ thực nghiệm (TN) của Kuper *et al* (1954) [7]

T (K)	$c_{Si} = 0$			$c_{Si} = 1\%$	$c_{Si} = 3\%$
	SMM	Kumar [6]	Kuper [7]		
933,95	$3,6909.10^{-12}$	$1,10366.10^{-12}$	$2,53.10^{-12}$	$3,5544.10^{-12}$	$3,2990.10^{-12}$
957,95	$6,4701.10^{-12}$	$2,13051.10^{-12}$	$3,71.10^{-12}$	$6,2368.10^{-12}$	$5,7995.10^{-12}$
988,95	$12,8321.10^{-12}$	$4,62409.10^{-12}$	$7,92.10^{-12}$	$12,3831.10^{-11}$	$11,5407.10^{-12}$
1038,35	$3,5118.10^{-11}$	$1,47118.10^{-11}$	$2,2.10^{-11}$	$3,3943.10^{-11}$	$3,1733.10^{-11}$
1085,35	$8,4070.10^{-11}$	$3,98704.10^{-11}$	$6,8.10^{-11}$	$8,1362.10^{-11}$	$7,6261.10^{-11}$
1100,00	$1,0869.10^{-10}$			$1,0523.10^{-10}$	$9,8705.10^{-11}$
1112,15	$1,3382.10^{-10}$	$6,77891.10^{-11}$	$1,05.10^{-10}$	$1,2959.10^{-10}$	$1,2162.10^{-10}$
1150,00	$2,4867.10^{-10}$			$2,4102.10^{-10}$	$2,2658.10^{-10}$
1209,85	$6,1228.10^{-10}$	$3,84603.10^{-10}$	$5,91.10^{-10}$	$5,9412.10^{-10}$	$5,5978.10^{-10}$
1250,00	$1,0680.10^{-9}$			$1,0370.10^{-9}$	$9,7832.10^{-10}$
1300,00	$2,0358.10^{-9}$			$1,9781.10^{-9}$	$1,8687.10^{-9}$
1336,15	$3,1502.10^{-9}$	$2,48982.10^{-9}$	$4,12.10^{-9}$	$3,0621.10^{-9}$	$2,8953.10^{-9}$

Bảng 3 và Bảng 4 cho hệ số khuếch tán của Cu,CuSi và Au.AuSi tại các nhiệt độ và nồng độ khác nhau ở áp suất không theo tính toán SMM của chúng tôi trong so sánh với các kết quả tính toán của Kumar (2017) [6] và từ thực nghiệm của Kuper *et al.* (1954) [7]. Đối với tất cả các kim loại, giá trị của hệ số khuếch tán chỉ đáng kể ở vùng nhiệt độ cao. Còn ở vùng nhiệt độ thấp, các giá trị này rất nhỏ. Điều này chứng tỏ rằng quá trình khuếch tán của các nguyên tử kim loại chỉ xảy ra mạnh ở vùng nhiệt độ cao. Sự phụ thuộc nhiệt độ của hệ số khuếch tán đối với Cu tại $P = 0$ tính bởi SMM, Kumar (2017) [6] và từ thực nghiệm của Kuper *et al.* (1954) [7] được minh họa trên Hình 1. Sự phụ thuộc nhiệt độ và nồng độ Si của hệ số khuếch tán đối với Au, AuSi tại $P = 0$ tính bởi SMM và từ thực nghiệm của Markin *et al.* (1957) [5] được minh họa trên Hình 2.



Hình 1. $D(T)$ đối với Cu tại $P = 0$ được tính bởi SMM, Kumar [6] và từ TN của Kuper [7]



Hình 2. $D(T, c_{Si})$ đối với AuSi tại $P = 0$ được tính bởi SMM và Markin [5]

Bảng 4. Hệ số khuếch tán D (cm^2s^{-1}) của Au, AuSi tại các nhiệt độ khác nhau ở áp suất không được tính bởi SMM và Markin *et al.*(1957) [5]

T (K)	$c_{Si} = 0$		$c_{Si} = 1\%$	$c_{Si} = 3\%$
	Markin [5]	SMM		
977,0	$4,22 \cdot 10^{-11}$	$5,34 \cdot 10^{-11}$	$7,35 \cdot 10^{-12}$	$1,27 \cdot 10^{-13}$
1000,0	-	$8,95 \cdot 10^{-11}$	$1,29 \cdot 10^{-11}$	$2,42 \cdot 10^{-13}$
1015,5	$9,76 \cdot 10^{-11}$	$1,25 \cdot 10^{-10}$	$1,85 \cdot 10^{-11}$	$3,67 \cdot 10^{-13}$
1045,0	$1,08 \cdot 10^{-10}$	$2,30 \cdot 10^{-10}$	$3,78 \cdot 10^{-11}$	$7,85 \cdot 10^{-13}$
1075,0	$3,01 \cdot 10^{-10}$	$4,13 \cdot 10^{-10}$	$6,74 \cdot 10^{-11}$	$1,63 \cdot 10^{-12}$
1100,0	-	$6,55 \cdot 10^{-10}$	$1,11 \cdot 10^{-10}$	$2,90 \cdot 10^{-12}$
1109,5	$5,56 \cdot 10^{-10}$	$7,76 \cdot 10^{-10}$	$1,34 \cdot 10^{-10}$	$3,60 \cdot 10^{-12}$
1181,5	$1,66 \cdot 10^{-9}$	$2,57 \cdot 10^{-9}$	$4,88 \cdot 10^{-10}$	$1,59 \cdot 10^{-11}$
1186,5	$1,81 \cdot 10^{-9}$	$2,78 \cdot 10^{-9}$	$5,31 \cdot 10^{-10}$	$1,75 \cdot 10^{-11}$
1200,0	-	$3,41 \cdot 10^{-9}$	$6,64 \cdot 10^{-10}$	$2,27 \cdot 10^{-11}$
1221,5	$3,29 \cdot 10^{-9}$	$4,70 \cdot 10^{-9}$	$9,37 \cdot 10^{-10}$	$3,37 \cdot 10^{-11}$
1284,0	$7,26 \cdot 10^{-9}$	$11,14 \cdot 10^{-9}$	$2,39 \cdot 10^{-9}$	$9,89 \cdot 10^{-11}$
1300,0	-	$1,37 \cdot 10^{-8}$	$2,99 \cdot 10^{-9}$	$1,28 \cdot 10^{-10}$
1321,0	$1,15 \cdot 10^{-8}$	$1,77 \cdot 10^{-8}$	$3,98 \cdot 10^{-9}$	$1,78 \cdot 10^{-10}$

Giá trị của thể tích kích hoạt V^a của các kim loại Au, Cu và các hợp kim AuSi, CuSi được tính bởi SMM và các tính toán khác của Ehrhar *et al.* (1991) [8], Ackland *et al.* (1987), Rosato *et al.* (1989) được trình bày trong Bảng 5. Ở đây ta thấy có sự phù hợp tốt giữa SMM với các tính toán khác.

Bảng 5. Tỷ số thể tích $\frac{V^a}{v}$ đối với Au, Cu, AuSi và CuSi ở gần nhiệt độ nóng chảy được tính bởi SMM và các tính toán khác [8-10]

Phương pháp	$c_{Si} = 0$				$c_{Si} = 1\%$	$c_{Si} = 2\%$
	Ehrhar [8]	Ackland [9]	Rosato [10]	SMM	SMM	SMM
CuSi	0,75	0,77	0,80	0,87	0,89	0,91
AuSi	0,85	0,73	0,72	0,86	0,88	0,90

Ảnh hưởng của nồng độ nguyên tử xen kẽ, nhiệt độ và độ biến dạng lên hệ số trước hàm mũ D_0 của AuSi và CuSi tính bởi SMM được tổng kết trong Bảng 6, Bảng 8 và được minh họa trên Hình 3 và Hình 5. Ảnh hưởng của nồng độ nguyên tử xen kẽ, nhiệt độ và độ biến dạng lên hệ số khuếch tán D của AuSi và CuSi tính bởi SMM được tổng kết trong Bảng 7, Bảng 9 và được minh họa trên Hình 4 và Hình 6.

Bảng 6. Sự phụ thuộc nồng độ Si, nhiệt độ T và độ biến dạng ε của hệ số trước hàm mũ D_0 (cm^2/s) đối với Au, AuSi tại $P = 0$ tính bởi SMM

$c_{Si}(\%)$	$\varepsilon(\%)$ $T(K)$	1	2	3	4	5
		0	700	0,0027	0,0025	0,0022
	900	0,0491	0,0444	0,0394	0,0338	0,0258
	1100	0,1960	0,1754	0,1524	0,221	0,0631
1	700	$0,6170 \cdot 10^{-3}$	$0,5638 \cdot 10^{-3}$	$0,5090 \cdot 10^{-3}$	$0,4506 \cdot 10^{-3}$	$0,3839 \cdot 10^{-3}$
	900	0,0204	0,0185	0,0165	0,0142	0,0111
	1100	0,1116	0,1002	0,0875	0,0712	0,0409
3	700	$0,0253 \cdot 10^{-3}$	$0,0231 \cdot 10^{-3}$	$0,0209 \cdot 10^{-3}$	$0,0186 \cdot 10^{-3}$	$0,0161 \cdot 10^{-3}$
	900	0,0031	0,0028	0,0025	0,0022	0,0018
	1100	0,0330	0,0297	0,0263	0,0221	0,0151

Bảng 7. Sự phụ thuộc nồng độ Si, nhiệt độ T và độ biến dạng ε của hệ số khuếch tán D (cm^2/s) đối với Au, AuSi tại $P = 0$ tính bởi SMM

$c_{Si}(\%)$	$\varepsilon(\%)$ $T(K)$	1	2	3	4	5
		0	700	$6,3361 \cdot 10^{-15}$	$5,7862 \cdot 10^{-15}$	$5,2164 \cdot 10^{-15}$
	900	$7,0534 \cdot 10^{-12}$	$6,3841 \cdot 10^{-12}$	$5,6714 \cdot 10^{-12}$	$4,8552 \cdot 10^{-12}$	$3,7053 \cdot 10^{-12}$
	1100	$5,8946 \cdot 10^{-10}$	$5,2761 \cdot 10^{-10}$	$4,5839 \cdot 10^{-10}$	$3,6729 \cdot 10^{-10}$	$1,8983 \cdot 10^{-10}$
1	700	$0,4158 \cdot 10^{-15}$	$0,3800 \cdot 10^{-15}$	$0,3430 \cdot 10^{-15}$	$0,3037 \cdot 10^{-15}$	$0,2587 \cdot 10^{-15}$
	900	$0,8295 \cdot 10^{-12}$	$0,7520 \cdot 10^{-12}$	$0,6699 \cdot 10^{-12}$	$0,5771 \cdot 10^{-12}$	$0,4497 \cdot 10^{-12}$
	1100	$1,0027 \cdot 10^{-10}$	$0,8999 \cdot 10^{-10}$	$0,7861 \cdot 10^{-10}$	$0,6396 \cdot 10^{-10}$	$0,3673 \cdot 10^{-10}$
3	700	$0,0016 \cdot 10^{-15}$	$0,0015 \cdot 10^{-15}$	$0,0014 \cdot 10^{-15}$	$0,0012 \cdot 10^{-15}$	$0,0010 \cdot 10^{-15}$
	900	$0,0104 \cdot 10^{-12}$	$0,0095 \cdot 10^{-12}$	$0,0085 \cdot 10^{-12}$	$0,0074 \cdot 10^{-12}$	$0,0060 \cdot 10^{-12}$
	1100	$0,0263 \cdot 10^{-10}$	$0,0237 \cdot 10^{-10}$	$0,0209 \cdot 10^{-10}$	$0,0176 \cdot 10^{-10}$	$0,0120 \cdot 10^{-10}$

Bảng 8. Sự phụ thuộc nồng độ Si, nhiệt độ T và độ biến dạng ε của hệ số trước hàm mũ D_0 (cm^2/s) đối với Cu, CuSi tại $P = 0$

$c_{\text{Si}}(\%)$	$\varepsilon(\%)$ $T(\text{K})$	1	2	3	4	5
0	700	$3,8998.10^{-8}$	$3,7623.10^{-8}$	$3,6264.10^{-8}$	$3,4898.10^{-8}$	$3,3504.10^{-8}$
	900	$0,6996.10^{-4}$	$0,6713.10^{-4}$	$0,6429.10^{-4}$	$0,6140.10^{-4}$	$0,5841.10^{-4}$
	1100	$0,2936.10^{-2}$	$0,2804.10^{-2}$	$0,2670.10^{-2}$	$0,2532.10^{-2}$	$0,2386.10^{-2}$
1	700	$3,4701.10^{-8}$	$3,3646.10^{-8}$	$3,2889.10^{-8}$	$3,2370.10^{-8}$	$3,2048.10^{-8}$
	900	$0,6548.10^{-4}$	$0,6293.10^{-4}$	$0,6070.10^{-4}$	$0,5870.10^{-4}$	$0,5683.10^{-4}$
	1100	$0,2825.10^{-2}$	$0,2699.10^{-2}$	$0,2581.10^{-2}$	$0,2467.10^{-2}$	$0,2352.10^{-2}$
3	700	$2,7113.10^{-8}$	$2,6550.10^{-8}$	$2,6683.10^{-8}$	$2,7459.10^{-8}$	$2,8891.10^{-8}$
	900	$0,5660.10^{-4}$	$0,5457.10^{-4}$	$0,5338.10^{-4}$	$0,5290.10^{-4}$	$0,5302.10^{-4}$
	1100	$0,2583.10^{-2}$	$0,2469.10^{-2}$	$0,2381.10^{-2}$	$0,2311.10^{-2}$	$0,2256.10^{-2}$

Bảng 9. Sự phụ thuộc nồng độ Si, nhiệt độ T và độ biến dạng ε của hệ số khuếch tán D (cm^2/s) đối với Cu, CuSi tại $P = 0$

$c_{\text{Si}}(\%)$	$\varepsilon(\%)$ $T(\text{K})$	1	2	3	4	5
0	700	$2,1614.10^{-15}$	$2,0787.10^{-15}$	$1,9904.10^{-15}$	$1,8967.10^{-15}$	$1,7980.10^{-15}$
	900	$1,6557.10^{-12}$	$1,5863.10^{-12}$	$1,5137.10^{-12}$	$1,4374.10^{-12}$	$1,3571.10^{-12}$
	1100	$1,1303.10^{-10}$	$1,0787.10^{-10}$	$1,0251.10^{-10}$	$0,9688.10^{-10}$	$0,9088.10^{-10}$
1%	700	$2,0463.10^{-15}$	$1,9713.10^{-15}$	$1,8992.10^{-15}$	$1,8288.10^{-15}$	$1,7593.10^{-15}$
	900	$1,5885.10^{-12}$	$1,5229.10^{-12}$	$1,4588.10^{-12}$	$1,3951.10^{-12}$	$1,3309.10^{-12}$
	1100	$1,0923.10^{-10}$	$1,0428.10^{-10}$	$0,9938.10^{-10}$	$0,9443.10^{-10}$	$0,8931.10^{-10}$
3%	700	$1,8357.10^{-15}$	$1,7744.10^{-15}$	$1,7309.10^{-15}$	$1,7025.10^{-15}$	$1,6876.10^{-15}$
	900	$1,4630.10^{-12}$	$1,4044.10^{-12}$	$1,3561.10^{-12}$	$1,3158.10^{-12}$	$1,2820.10^{-12}$
	1100	$1,0208.10^{-10}$	$0,9750.10^{-10}$	$0,9346.10^{-10}$	$0,8979.10^{-10}$	$0,8635.10^{-10}$

Theo Hình 4 và Hình 6, khi độ biến dạng tăng hay ứng suất kéo tăng thì hệ số khuếch tán giảm. Điều này hoàn toàn phù hợp với các dự đoán của Aziz (1997) [11].

Sự phụ thuộc của hệ số khuếch tán D vào nhiệt độ T và sự phụ thuộc của $\ln D$ vào nghịch đảo của nhiệt độ T đối với Au tại $P = 10$ GPa được tính bởi SMM và từ thực nghiệm của Dickenson (1954) [13] được chỉ ra trong Bảng 10, Bảng 11 và Hình 7. Kết quả trong Bảng 11 và trên Hình 7 chứng tỏ rằng định luật Arrhenius được nghiệm đúng đối với kim loại Au và hợp kim xen kẽ AuSi.

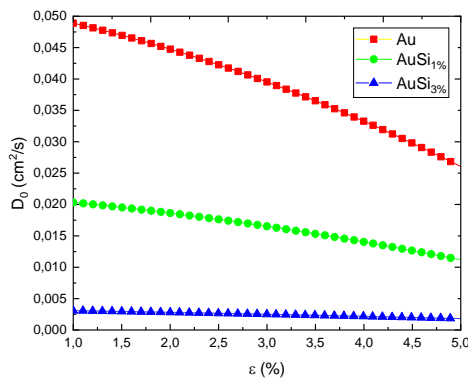
Bảng 12, Bảng 13 và Bảng 14 chỉ ra sự phụ thuộc áp suất và nồng độ nguyên tử Si của năng lượng kích hoạt và hệ số khuếch tán của các kim loại Au, Cu và các hợp kim AuSi, CuSi tại các nhiệt độ xác định tính bởi SMM.

Bảng 10. Sự phụ thuộc nhiệt độ của hệ số khuếch tán $D(\text{cm}^2/\text{s})$ đối với Au tại $P = 10 \text{ GPa}$ được tính bởi SMM và từ TN của Dickerson (1954) [13]

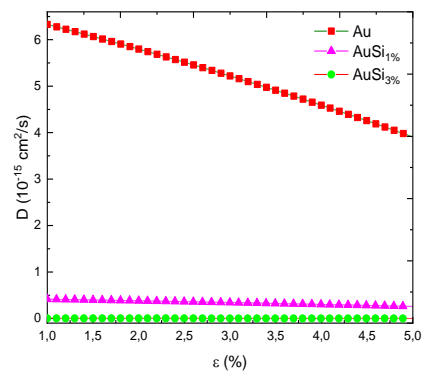
$T(\text{K})$	$D(\text{cm}^2/\text{s})$ (SMM)	$D(\text{cm}^2/\text{s})$ (Dickerson [13])
1473	$4,15 \cdot 10^{-11}$	$5,27 \cdot 10^{-11}$
1673	$5,67 \cdot 10^{-10}$	$8,32 \cdot 10^{-10}$
1873	$4,41 \cdot 10^{-9}$	$3,14 \cdot 10^{-9}$

Bảng 11. Sự phụ thuộc của $\ln D$ ($D(\text{cm}^2/\text{s})$) vào $\frac{10000}{T}$ đối với Au và AuSi tại $P = 10 \text{ GPa}$ được tính bởi SMM và từ TN của Dickerson (1954) [13]

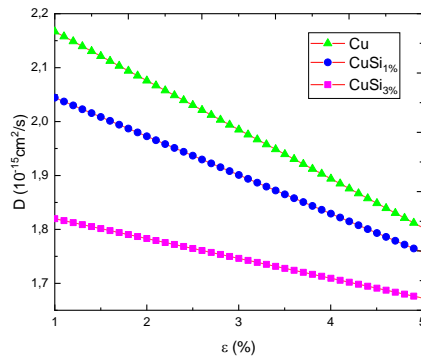
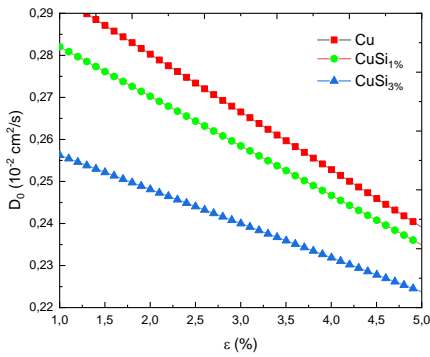
$T(\text{K})$	$\frac{10000}{T}$	$c_{\text{Si}} = 0$		$c_{\text{Si}} = 1\%$	$c_{\text{Si}} = 2\%$	$c_{\text{Si}} = 3\%$
		SMM	Dickerson [13]	SMM	SMM	SMM
1473	6,79	- 10,3822	- 10,2782	- 10,9494	- 11,5288	-12,1205
1500	6,67	- 10,2108		- 10,7689	- 11,3393	- 11,9219
1600	6,25	- 9,6276		- 10,1548	- 10,6944	- 11,2463
1673	5,98	- 9,2465	- 9,0799	- 9,7538	- 10,2736	- 10,8059
1700	5,88	- 9,1139		- 9,6144	- 10,1275	- 10,6530
1800	5,56	- 8,6579		- 9,1353	- 9,6254	- 10,1281
1873	5,34	- 8,3558	- 8,5031	- 8,8184	- 9,2938	- 9,7820



Hình 3. $D_0(c_{\text{Si}}, \varepsilon)$ đối với Au, AuSi tại $T = 900 \text{ K}$ và $P = 0$ được tính bởi SMM



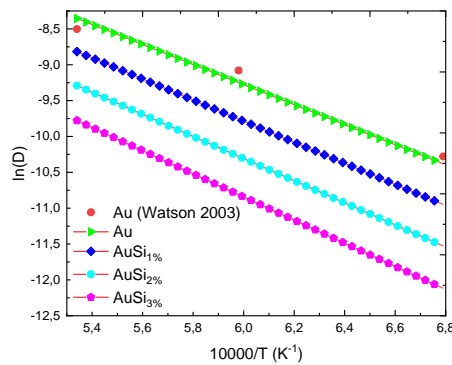
Hình 4. $D(c_{\text{Si}}, \varepsilon)$ đối với Au, AuSi tại $T = 700 \text{ K}$ và $P = 0$ được tính bởi SMM



Hình 5. $D_0(c_{Si}, \epsilon)$ đối với Cu, CuSi tại $T = 1100\text{ K}$ và $P = 0$ được tính bởi SMM **Hình 6.** $D(c_{Si}, \epsilon)$ đối với Cu, CuSi tại $T = 700\text{ K}$ và $P = 0$ được tính bởi SMM

Bảng 12. Sự phụ thuộc áp suất P (GPa) của năng lượng kích hoạt Q (kcal/mol) và hệ số khuếch tán D (cm^2/s) đối với Au, AuSi tại $T = 1673\text{ K}$ được tính bởi SMM

P	$c_{Si} = 0$			$c_{Si} = 2\%$			$c_{Si} = 4\%$		
	Q	D	$\ln D$	Q	D	$\ln D$	Q	D	$\ln D$
0	47,14	$5,77 \cdot 10^{-7}$	-6,24	54,24	$4,67 \cdot 10^{-8}$	-7,33	61,64	$3,22 \cdot 10^{-9}$	-8,49
10	48,50	$5,67 \cdot 10^{-10}$	-9,25	54,76	$5,33 \cdot 10^{-11}$	-10,27	61,25	$4,46 \cdot 10^{-12}$	-11,35
20	48,15	$1,69 \cdot 10^{-12}$	-11,77	53,32	$2,22 \cdot 10^{-13}$	-12,65	58,64	$2,68 \cdot 10^{-14}$	-13,57
40	45,83	$7,05 \cdot 10^{-17}$	-16,15	48,67	$1,93 \cdot 10^{-17}$	-16,71	51,49	$5,12 \cdot 10^{-18}$	-17,29
60	42,53	$8,98 \cdot 10^{-21}$	-20,05	43,08	$4,63 \cdot 10^{-21}$	-20,33	43,39	$2,42 \cdot 10^{-21}$	-20,62
80	38,67	$2,26 \cdot 10^{-24}$	-23,65	34,19	$4,30 \cdot 10^{-24}$	-23,37	29,94	$7,06 \cdot 10^{-24}$	-23,15
100	34,43	$9,07 \cdot 10^{-28}$	-27,04	29,10	$2,13 \cdot 10^{-27}$	-26,67	22,63	$5,60 \cdot 10^{-27}$	-26,25
120	29,86	$5,17 \cdot 10^{-31}$	-30,29	20,87	$2,63 \cdot 10^{-30}$	-29,58	10,63	$1,30 \cdot 10^{-29}$	-28,89



Hình 7. Sự phụ thuộc của $\ln D$ ($D(\text{cm}^2/\text{s})$) vào $\frac{10000}{T}$ đối với Au, AuSi tại $c_{Si} = 1, 2$ và 3% và $P = 10\text{ GPa}$ được tính bởi SMM và từ TN [12]

Bảng 13. Sự phụ thuộc áp suất P (kbar) của năng lượng kích hoạt Q (kcal/mol) và hệ số khuếch tán D (cm^2/s) đối với Au, AuSi tại $T = 1673$ K được tính bởi SMM

P	$c_{\text{Si}} = 0$				$c_{\text{Si}} = 2\%$		$c_{\text{Si}} = 4\%$	
	Dickerson [13]		SMM		SMM		SMM	
	D	$\ln D$	D	$\ln D$	D	$\ln D$	D	$\ln D$
0	$1,80 \cdot 10^{-9}$	-8,74	$2,721 \cdot 10^{-9}$	-8,57	$0,953 \cdot 10^{-10}$	-10,02	$0,292 \cdot 10^{-11}$	-11,53
2	$1,5 \cdot 10^{-9}$	-8,82	$2,193 \cdot 10^{-9}$	-8,66	$0,762 \cdot 10^{-10}$	-10,12	$0,232 \cdot 10^{-11}$	-11,63
4,05	$1,32 \cdot 10^{-9}$	-8,88	$1,760 \cdot 10^{-9}$	-8,75	$0,608 \cdot 10^{-10}$	-10,22	$0,184 \cdot 10^{-11}$	-11,74
6,06	$1,18 \cdot 10^{-9}$	-8,93	$1,421 \cdot 10^{-9}$	-8,85	$0,488 \cdot 10^{-10}$	-10,31	$0,147 \cdot 10^{-11}$	-11,83
7,57	$9,08 \cdot 10^{-10}$	-9,04	$1,211 \cdot 10^{-9}$	-8,92	$0,414 \cdot 10^{-10}$	-10,38	$0,124 \cdot 10^{-11}$	-11,91
9,08	$9,19 \cdot 10^{-10}$	-9,04	$1,032 \cdot 10^{-9}$	-8,99	$0,352 \cdot 10^{-10}$	-10,45	$0,105 \cdot 10^{-11}$	-11,98

(TN của Dickerson (1954) [13] đo ở nhiệt độ từ 1181 đến 1194K, còn SMM tính ở 1183 K)

Bảng 14. Sự phụ thuộc áp suất P (GPa) của năng lượng kích hoạt Q (kcal/mol) và hệ số khuếch tán D (cm^2/s) đối với Cu, CuSi tại $T = 1400$ K tính bởi SMM

P	$c_{\text{Si}} = 0$			$c_{\text{Si}} = 2\%$			$c_{\text{Si}} = 4\%$		
	Q	D	$\ln D$	Q	D	$\ln D$	Q	D	$\ln D$
0	43,92	$7,10 \cdot 10^{-9}$	-8,15	44,00	$6,68 \cdot 10^{-9}$	-8,17	44,03	$6,30 \cdot 10^{-9}$	-8,20
10	43,99	$3,20 \cdot 10^{-11}$	-10,49	43,95	$3,10 \cdot 10^{-11}$	-10,51	43,82	$3,00 \cdot 10^{-11}$	-10,52
20	43,82	$3,04 \cdot 10^{-13}$	-12,52	43,53	$3,42 \cdot 10^{-13}$	-12,47	43,13	$3,82 \cdot 10^{-13}$	-12,42
40	43,16	$9,02 \cdot 10^{-17}$	-16,04	42,31	$1,46 \cdot 10^{-16}$	-15,83	41,19	$2,31 \cdot 10^{-16}$	-15,64
60	42,27	$6,81 \cdot 10^{-20}$	-19,17	40,89	$1,62 \cdot 10^{-19}$	-18,78	38,90	$3,77 \cdot 10^{-19}$	-18,42
80	41,23	$9,26 \cdot 10^{-23}$	-22,03	40,88	$1,75 \cdot 10^{-21}$	-20,76	36,21	$1,68 \cdot 10^{-20}$	-19,77
100	40,05	$1,91 \cdot 10^{-25}$	-24,72	35,38	$8,61 \cdot 10^{-25}$	-24,06	30,25	$3,68 \cdot 10^{-24}$	-23,43
120	38,76	$5,45 \cdot 10^{-28}$	-27,26	33,34	$3,95 \cdot 10^{-27}$	-26,40	26,76	$2,48 \cdot 10^{-26}$	-25,60
140	37,36	$2,01 \cdot 10^{-30}$	-29,70	30,31	$1,95 \cdot 10^{-29}$	-28,71	21,81	$1,70 \cdot 10^{-28}$	-27,77
160	35,85	$9,12 \cdot 10^{-33}$	-32,04	27,22	$2,30 \cdot 10^{-31}$	-30,89	16,58	$1,60 \cdot 10^{-30}$	-29,80
180	34,23	$4,96 \cdot 10^{-35}$	-34,30	24,00	$9,06 \cdot 10^{-34}$	-33,04	10,35	$1,75 \cdot 10^{-32}$	-31,76

3. Kết luận

Chúng tôi đã thực hiện tính số đối với thể tích kích hoạt nút khuyết V^* , năng lượng kích hoạt Q , hệ số trước hàm mũ D_0 , hệ số khuếch tán D đối với các kim loại Au, Cu và các hợp kim xen kẽ AuSi, CuSi trong khoảng nồng độ nguyên tử xen kẽ từ 0 đến 4%, trong khoảng nhiệt độ từ 700 đến 1873 K, trong khoảng áp suất từ 0 đến 180 GPa và trong khoảng độ biến dạng từ 0 đến 5%. Chúng tôi đã tìm sự phụ thuộc của hệ số khuếch tán vào áp suất và độ biến dạng đối với các kim loại và hợp kim nói trên. Kết quả tính số của chúng tôi đã chứng tỏ rằng đường phụ thuộc của $\ln D$ vào nghịch đảo của nhiệt độ T là một đường đơn điệu giảm và như vậy, định luật khuếch tán Arrhenius được nghiệm đúng đối với kim loại và hợp kim xen kẽ tại các áp suất và nồng độ nguyên tử xen kẽ khác nhau. Các kết quả tính số bằng SMM đối với kim loại Au ở các nhiệt độ cao (1000 và 1250 K) và áp suất không phù hợp tốt với thực nghiệm đối với năng lượng kích hoạt (sai số dưới 10%) và phù hợp về bậc độ lớn đối với hệ số trước hàm mũ và hệ số khuếch tán. Các kết quả tính số hệ số khuếch tán bằng SMM đối với kim loại Au trong khoảng nhiệt độ từ 977 đến 1321 K

và đối với Cu trong khoảng nhiệt độ từ 933,95 đến 1336,15 K được so sánh với với thực nghiệm và tính toán khác và cho sự phù hợp khá tốt về bậc độ lớn. Các kết quả tính số thể tích kích hoạt bằng SMM đối với Au và Cu phù hợp tốt với các tính toán khác. Các kết quả tính số bằng SMM đối với các đại lượng khuếch tán của các hợp kim xen kẽ AuSi, CuSi ở các nhiệt độ, áp suất, ứng suất và nồng độ nguyên tử xen kẽ khác nhau có tính dự báo, định hướng cho các thực nghiệm trong tương lai.

Lời cảm ơn. Bài báo được thực hiện với sự tài trợ của đề tài “Nghiên cứu biến dạng và khuếch tán của hợp kim nhị nguyên và tam nguyên với cấu trúc lập phương ở dạng vật liệu khối và màng mỏng” của Trường Đại học Giao thông vận tải với mã số T2022-CB-010.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] A. M. Sagrubskaa, 1937. *Izv.Akad. Nauk. SSSR*, Vol. 6, p. 903.
- [2] H. A.C. McKay, 1938. The self-diffusion coefficient of gold. *Transactions of the Faraday Society*, Vol. 34, pp. 845-849.
- [3] H. C. Gatos and A. D. Kurtz, 1954. Determination of the self-diffusion coefficients of gold by Autoradiography. *Journal of Metals, New York*, Vol. 6, p. 616.
- [4] B. Okkerse, 1956. Self-diffusion of gold. *Physical. Review*, Vol. 103, p.1246.
- [5] S. M. Makin, H. A. Rowe and A. D. Leclaire, 1957. Self-difusion in gold. *Proceedings of the Physical Society, Section B*, Vol. 70, Iss. 6, pp. 545-552.
- [6] G. Kumar, 2017. The Ring cum Vacancy Mechanism of Diffusion in Pure Metals, *International Journal of Science and Research (IJSR)*, Vol. 6, Iss. 9, pp. 939-946.
- [7] A. A. Kuper, H. Letaw, L. Slifkin, E. Sondkr and C.T. Tomizuka, 1954. Self-diffusion in copper, *Physical Review*, Vol. 96, pp. 1224-1225.
- [8] P. P. Ehrhart, P. Jung, H. Schultz and H. Ullmaier, 1991. In *Atomic defects in metals*, edited by H. Ullmaier, Landolt-Bo`rnstein, New Series, Group III, Vol. 25 Springer-Verlag, Berlin.
- [9] G. J. Ackland, G. Tichy, V. Vitek and M. W. Finnis, 1987. Simple *N*-body potentials for noble metals and nickel. *Philosophical Magazine A*, Vol. 56, No. 6, pp. 735-756.
- [10] V. Rosato, M.Guillope and B.Legrand, 1989. Thermodynamical and structural properties of fcc transition metals using a simple tight-binding model. *Philosophical Magazine A*, Vol. 59, Iss. 2, pp. 321-336.
- [11] M. J.Aziz, 1997. Thermodynamics of diffusion under pressure and stress: Relation to point defect mechanisms. *Applied Physics Letters*, Vol. 70, Iss. 21, pp.2810-2812.
- [12] [http:// www.lpi.usra.edu/meetings/lpsc2003/pdf/1871.pdf](http://www.lpi.usra.edu/meetings/lpsc2003/pdf/1871.pdf).
- [13] R.H. Dickerson, 1954. *Effect of hydrostatic pressure on the self-diffusion rate in single crystals of gold*, University of Arizona.
- [14] 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*, Iss. 8, pp. 48-56.
- [15] 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 Sciences*, Vol. 61, Iss. 4, pp. 3-9.
- [16] 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, Iss. 3, pp. 31-38.

- [17] 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, Iss. 10, pp. 18-23.
- [18] N. Q. Hoc, N. D. Hien, V. T. Linh, P. H. Trang and L. H. Viet, 2021. Nghiên cứu sự khuếch tán của nguyên tử xen kẽ trong hợp kim xen kẽ AuSi với cấu trúc lập phương tâm diện. *Journal of Science of HNUE, Natural Sciences*, Vol. 66, Iss. 1, pp.30-41.
- [19] M. N. Magomedov, 1987. On calculating the Debye temperature and the Gruneisen parameter. *Zhurnal Fizicheskoi Khimii*, Vol. 61, Iss.4, pp.1003-1009 (in Russian).
- [20] M. N. Magomedov, 2006. The calculation of the parameters of the Mie-Lennard-Jones potential. *High Temperature*, Vol.44, Iss.4, pp.513-529.
- [21] R. J. Good and C. J. Hope, 1970, *The Journal of Chemical Physics*, Vol. 53, Iss.2, pp.540-543.

ABSTRACT

Diffusion in metals Au, Cu, and interstitial alloys AuSi, CuSi

Nguyen Quang Hoc¹, Nguyen Duc Hien², Nguyen Thi Hoa^{3,*},
Le Lan Phuong¹ and Nguyen Ngoc Le¹

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

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

³*University of Transport and Communications*

The paper performs numerically the vacancy activation volume, the activation energy, the pre-exponential factor, and the diffusion coefficient for metals Au, Cu, and alloys AuSi, CuSi in the interval of the concentration of interstitial atoms from zero to 4%, in the interval of temperature from 700 to 1873 K, in the interval of pressure from zero to 180 GPa and the interval of strain from zero to 5%. The paper determines the dependence of the diffusion coefficient on pressure and stress for above mentioned metals and alloys. SMM numerical results show that the Arrhenius law is satisfied for metals and interstitial alloys at different pressures and concentrations of interstitial atoms. SMM numerical results for Au at $T = 1000$ K and $T = 1250$ K and at zero pressure are in good agreement with experiments for the activation energy (errors are below 10%) and agree in terms of magnitude for the pre-exponential factor and the diffusion coefficient. SMM numerical results of the diffusion coefficient for Au in the interval of temperature from 977 to 1321 K and for Cu in the interval of temperature from 933.95 to 1336.15 K are compared with experiments and other calculations and there are rather good agreement in terms of magnitude. SMM numerical results of the activation volume of Au and Cu agree well with other calculations. SMM numerical results for diffusion quantities of interstitial alloys AuSi, CuSi in different temperatures, pressures, stresses, and concentrations of interstitial atoms anticipate and orient experiments in the future.

Keywords: interstitial alloy, activation energy, pre-exponential factor, diffusion coefficient, activation volume, stress, statistical moment method.