

# TÍNH NỒNG ĐỘ DIVACANCY HÌNH THÀNH TRONG KIM LOẠI AL BẰNG MÔ HÌNH BÃY POSITRON CÓ TÍNH ĐẾN SỰ THOÁT BÃY CỦA MONOVACANCY

Châu Văn Tạo - Mai Văn Nhơn - Lê Tấn Hậu - Phan Quốc Uy

Trường Đại học Khoa học Tự nhiên

(Bài nhận ngày 21/09/1999)

**TÓM TẮT:** Bằng cách áp dụng mô hình bẫy positron cho kim loại Al với sự có mặt của Monovacancy, divacancy có tính đến hiệu ứng thoát bẫy của positron đối với monovacancy, năng lượng hình thành monovacancy và divacancy trong kim loại Al đã được tính. Áp dụng giá trị năng lượng hình thành divacancy trong Al trong trường hợp tốc độ huỷ không phụ thuộc vào nhiệt độ là  $E_d^F = 0,956 \pm 0,120$  (eV) nồng độ tương đối divacancy xuất hiện trong Al ở những nhiệt độ khác nhau đã được chỉ ra. Những kết quả tính được là rất có ý nghĩa trong việc khảo sát cấu trúc bền vững của kim loại và hợp kim của kim loại Al

## I. MÔ HÌNH BÃY POSITRON TỔNG QUÁT TRONG KIM LOẠI VÀ HỢP KIM

Tốc độ bẫy của positron được quyết định qua hai ảnh hưởng :

- Positron phải di chuyển tới trạng thái bẫy, ở nhiệt độ đủ cao positron đã bị nhiệt hóa chuyển động trong môi trường có thể được mô tả bởi sự khuếch tán
- Khi positron đến bẫy thứ  $j$  thì positron phải nhảy vào trong bẫy với tốc độ bẫy là  $\sigma_j$  và sau đó cũng có thể thoát ra khỏi bẫy với tốc độ thoát bẫy  $\nu_j$ . Xác suất huỷ của positron với sai hỏng loại  $j$  là  $\lambda_j$ .

Trong những nghiên cứu về kim loại với sự sai số cho phép và đơn giản hóa bài toán chúng tôi giả sử rằng chỉ có monovacancy và sự kết hợp hai monovacancy lân cận hình thành divacancy có trong mẫu, Mô hình bẫy tổng quát của Brand[1] cho sự biến thiên của số positron tự do  $n_f(t)$ , số positron  $n_j$  tại loại bẫy  $j$ .

$$\frac{dn_f}{dt} = - \sum_{j=1}^m \sigma_j C_j n_f(t) + \sum_{j=1}^m \nu_j n_j(t) - n_f \lambda_f \quad (1)$$

$$\frac{dn_j}{dt} = \sigma_j C_j n_f - (\nu_j + \lambda_j) n_j(t) \quad (2)$$

Trong đó  $C_j$  là nồng độ của sai hỏng loại  $j$

Các tốc độ hủy tại trạng thái sai hỏng và trạng thái tự do có thể được tính từ đại lượng nghịch đảo của thời gian sống.

$$\lambda_f = \frac{1}{\tau_f} \quad \text{và} \quad \lambda_j = \frac{1}{\tau_j} \quad (3)$$

Với  $\tau_f$  là thời gian sống của positron tự do,  $\tau_j$  là thời gian sống của positron trong trạng thái bẫy  $j$ .

## II ÁP DỤNG MÔ HÌNH BÃY POSITRON TÍNH TOÁN CHO KIM LOẠI Al

### 1. Tính Năng lượng hình thành monovacancy trong kim loại Al

Giả sử rằng, trong mẫu chỉ có monovacancy, khi đó phương trình (1) (2) trở thành

$$\frac{dn_f}{dt} = -\lambda_f n_f - \sigma_v C_v n_f + \nu_v n_v \quad (4)$$

$$\frac{dn_v}{dt} = -\lambda_v n_v + \sigma_v C_v n_f - \nu_v n_v \quad (5)$$

Ở đây :

$n_f, n_v$ : số positron ở trạng thái tự do và trạng thái bẫy tại thời điểm  $t$

$\sigma_v$ : tốc độ bẫy của positron tại monovacancy [1][2]

$$\sigma_v = \sigma_0 T^x \quad (x = -1/2, 0, 1/2) \quad (6)$$

$C_v$ : nồng độ bẫy monovacancy

$\lambda_v, \lambda_f$ : tốc độ hủy của positron tại bẫy monovacancy và ở trạng thái tự do

Nếu như thông lượng của positron phát ra từ nguồn là không đổi theo thời gian (thời gian bán hủy của nguồn là lớn so với thời gian chiếu) thì theo trạng thái cân bằng thống kê của Doyama ta có:

$$\frac{dn_f}{dt} = \frac{dn_v}{dt} = 0 \quad (7)$$

$$\gamma_f = \frac{I_f}{I_f + I_v} = \frac{\lambda_f (\lambda_v + \nu_v)}{\lambda_f (\lambda_v + \nu_v) + \lambda_v \sigma_v C_v} \quad (8)$$

$$\gamma_v = \frac{I_v}{I_f + I_v} = \frac{\lambda_v \nu_v C_v}{\lambda_f (\lambda_v + \nu_v) + \lambda_v \sigma_v C_v} \quad (9)$$

Thời gian sống của positron đối với m loại bẫy cho bởi :

$$\tau = \tau_f \gamma_f + \sum_{j=1}^m \tau_j \gamma_j \quad (10)$$

Thời gian sống của positron tại monovacancy :

$$\tau = \frac{\lambda_v + \nu_v + \sigma_v C_v}{\lambda_f (\lambda_v + \nu_v) + \lambda_v \sigma_v C_v} = \frac{\tau_f [1 + (\nu_v + \sigma_v C_v) \tau_v]}{1 + \sigma_v \tau_v + \tau_f \sigma_v C_v} \quad (11)$$

Ở đây :

$$\tau_f = \frac{1}{\lambda_f} \quad ; \quad \tau_v = \frac{1}{\lambda_v} \quad (12)$$

Nếu như  $\nu_v$  là nhỏ khi đó sự thoát bẫy có thể bỏ qua chúng ta có :

$$\frac{\tau - \tau_f}{\tau_v - \tau} = \tau_f \sigma_v C_v \quad (13)$$

Theo [4] trong trạng thái cân bằng nhiệt thì nồng độ monovacancy cho bởi:

$$C_v = \exp\left(\frac{S_v}{k_B}\right) \exp\left(-\frac{E_F^v}{k_B T}\right) \quad (14)$$

Ở đây  $E_F^v$  : năng lượng hình thành monovacancy

$k_B$  : hằng số Boltzmann

$S_v$  : entropy hình thành monovacancy , theo [3] thì  $S_v = 0.6k_B$  trong kim loại fcc và  $S_v = 2k_B$  trong kim loại bcc. Từ quan hệ này thì năng lượng tạo thành monovacancy có thể được tính, Khi  $\nu_v$  là đủ lớn tốc độ thoát bẫy không thể bỏ qua từ phương trình (8) thì :

$$\frac{\tau - \tau_f}{\tau_v - \tau} \tau_v \left(\frac{1}{\tau_v} + \nu_v\right) = \tau_f \sigma_v C_v^* \quad (15)$$

Từ phương trình (13) và (15)

$$\frac{C_v}{C_v^*} = \frac{\frac{\tau - \tau_f}{\tau_v - \tau}}{\left(\frac{\tau - \tau_f}{\tau_v - \tau}\right) \tau_v \left(\frac{1}{\tau_v} + \nu_v\right)} = \frac{1}{1 + \tau_v \nu_v} \quad (16)$$

Ở đây :

$C_v$  : nồng độ monovacancy được tính khi không có sự thoát bẫy

$C_v^*$  : nồng độ monovacancy khi tính đến sự thoát bẫy (nồng độ monovacancy thật sự trong mẫu)

$\tau_v$  : thời gian sống của positron tại monovacancy

$\nu_v$  : tốc độ thoát bẫy của positron tại bẫy là monovacancy nó được tính qua công thức của Seeger (

$$\nu_v = \frac{k_b T}{h} \exp\left(-\frac{\varepsilon_{vp}}{k_B T}\right) \quad (17)$$

Ở đây :

$\varepsilon_{vp}$  : năng lượng liên kết của positron tại trạng thái bẫy

$h$  : hằng số Planck

Trong trường hợp không có sự thoát bẫy từ [3] [5] ta có:

$$E_v^f = \frac{KT_1 T_2}{T_1 - T_2} \left[ \ln \frac{\Delta I_f^{(1)} \Delta I_v^{(2)}}{\Delta I_f^{(2)} \Delta I_v^{(1)}} + x \ln \frac{T_2}{T_1} \right] \quad (18)$$

Trong trường hợp có tính đến sự thoát bẫy từ [5] ta có :

$$E_v^{F*} = \frac{KT_1 T_2}{T_1 - T_2} \left[ \ln \frac{\Delta I_f^{(1)} \Delta I_v^{(2)}}{\Delta I_f^{(2)} \Delta I_v^{(1)}} + x \ln \frac{T_2}{T_1} + \ln A \right] \quad (19)$$

$$\text{Với } \Delta I_f(0) = I(0) - I_f(0)$$

$$\Delta I_v(0) = I(0) - I_v(0)$$

$$A = \frac{\lambda_v + \nu_v^{(1)}}{\lambda_v + \nu_v^{(2)}}$$

Kim loại Al có các giá trị  $\tau_v = 237 \cdot 10^{-12} \text{s}$  và  $\varepsilon_{vp} = 0.28 \text{eV}$  [4]

Với các số liệu từ [4], áp dụng các phương trình bẫy tổng quát, chúng tôi đã thu được các kết quả dưới đây

$$E_v^{F*} = E_v^f + \frac{kT_1 T_2}{T_1 - T_2} \ln A \quad (20)$$

X	$E_v^F$ (ev)	$E_v^{F*}$ (ev)
-1/2	$0.719 \pm 0.051$	$0.416 \pm 0.010$
0	$0.671 \pm 0.013$	$0.368 \pm 0.011$
1/2	$0.751 \pm 0.014$	$0.320 \pm 0.023$

Bảng 2: Các giá trị năng lượng hình thành monovacancy trong kim loại Al

## 2. Hiệu chỉnh năng lượng hình thành monovacancy tính năng lượng hình thành divacancy trong kim loại Al :

Trong tính toán [ 1] chỉ ra khi tỉ số nồng độ monovacancy vào khoảng  $10^{-6}$  thì có 10% số positron bị bẫy, do đó khi nồng độ monovacancy tăng lên vào khoảng  $10^{-4}$  thì hầu như toàn bộ số positron đi vào môi trường đều ở trạng thái bẫy. Điều này nói lên rằng giá trị  $I_v$  đặc trưng cho quá trình hủy tại trạng thái bẫy monovacancy sẽ tiến đến một giá trị hằng khi nồng độ monovacancy đạt đến giá trị bão hòa vào khoảng  $10^{-4}$  [6]. Từ những tính toán cho thấy rằng khi nhiệt độ vào khoảng  $400^\circ\text{C}$  thì nồng độ monovacancy đã đạt đến giá trị bão hòa  $10^{-4}$ . Tuy nhiên theo số liệu [4] thì số đếm vẫn tiếp tục tăng. Điều này được giải thích tại nhiệt độ cao khi nồng độ monovacancy đạt đến giá trị  $10^{-4}$ , khi đó có xác suất hai monovacancy liên kết với nhau tạo thành divacancy sẽ tăng lên và positron bị bắt và hủy tại các divacancy sẽ đóng góp cho sự tăng lên của số đếm. Do đó, sự hình thành divacancy trong vùng nhiệt độ cao cần được quan tâm. Chính những lý do trên chúng ta sẽ tính toán lại năng lượng hình thành monovacancy trong khoảng nhiệt độ bé hơn  $400^\circ\text{C}$  và năng lượng hình thành divacancy trong khoảng nhiệt độ cao hơn kèm theo cả hiệu ứng thoát bẫy của monovacancy. Bây giờ, chúng ta đi tìm biểu thức của năng lượng hình thành divacancy. Nếu chúng ta gọi  $I_d$  là thông số hủy của divacancy. Khi đó, ta có biểu thức sau.

$$I = \gamma_f I_f + \gamma_v I_v + \gamma_d I_d \quad (21)$$

Với  $\gamma_f$ ,  $\gamma_v$  và  $\gamma_d$  lần lượt là xác suất hủy của positron ở trạng thái tự do, trạng thái bẫy monovacancy và trạng thái bẫy divacancy. Bởi vì tổng xác suất của quá trình hủy là 1 nên ta có.

$$\gamma_f + \gamma_v + \gamma_d = 1 \quad (22)$$

Các xác suất hủy được xác định trong phương trình (22) .

$$\gamma_f = \frac{\lambda_f(\lambda_v + \nu_v)}{\lambda_f(\lambda_v + \nu_v) + \lambda_v\sigma_v C_v + (\lambda_v + \nu_v)\sigma_d C_d} \quad (23)$$

$$\gamma_v = \frac{\lambda_v\sigma_v C_v}{\lambda_f(\lambda_v + \nu_v) + \lambda_v\sigma_v C_v + (\lambda_v + \nu_v)\sigma_d C_d} \quad (24)$$

$$\gamma_d = \frac{(\lambda_v + \nu_v)\sigma_d C_d}{\lambda_f(\lambda_v + \nu_v) + \lambda_v\sigma_v C_v + (\lambda_v + \nu_v)\sigma_d C_d} \quad (25)$$

Với  $C_d$  là nồng độ divacancy ở nhiệt độ  $T$  . Ta có thể viết  $C_d$  dưới dạng sau.

$$C_d = C_{od} \exp\left(-\frac{E_d^F}{kT}\right) \quad (26)$$

Tốc độ bắt positron  $\sigma_d$  của divacancy ở đây chúng ta giả sử rằng là một đại lượng phụ thuộc vào nhiệt độ như là tốc độ bắt của monovacancy.[1]

$$\sigma_d = \sigma_{od} T^x \quad (27)$$

Từ các phương trình (21) đến (25) ta có thể thu được tốc độ đếm  $I(0)$  khi tính đến hiệu ứng divacancy

$$I(0) = \frac{\lambda_f(\lambda_v + \nu_v)I_f(0) + \lambda_v\sigma_v C_v I_v(0) + (\lambda_v + \nu_v)\sigma_d C_d I_d(0)}{\lambda_f(\lambda_v + \nu_v) + \lambda_v\sigma_v C_v + (\lambda_v + \nu_v)\sigma_d C_d} \quad (28)$$

Đưa các phương trình (26),(27) vào ( 28) và tính toán tại hai nhiệt độ khác nhau ta thu được biểu thức xác định nồng độ divacancy .

$$E_d^F = \frac{kT_1 T_2}{T_1 - T_2} \left[ \ln \frac{B^{(1)}\Delta I_f^{(1)} + \exp\left(-\frac{E_v^F}{kT_1}\right)\Delta I_v^{(1)}}{B^{(2)}\Delta I_f^{(2)} + \exp\left(-\frac{E_v^F}{kT_2}\right)\Delta I_v^{(2)}} + \ln \frac{\Delta I_d^{(2)}}{\Delta I_d^{(1)}} + \ln \left( \frac{\lambda_v + \nu_v^{(1)}}{\lambda_v + \nu_v^{(2)}} \right) \right] \quad (29)$$

Các chỉ số (1),(2) tương ứng với hai nhiệt độ  $T_1$  và  $T_2$  .

Các đại lượng trong (29) là như sau:

$$\Delta I_f = I(0) - I_f(0)$$

$$\Delta I_v = I(0) - I_v(0)$$

$$\Delta I_d = I(0) - I_d(0)$$

$$B^{(1),(2)} = \frac{\lambda_f (\lambda_v + v_v^{(1),(2)})}{\lambda_v \sigma_v C_{od} T_{(1),(2)}^x}$$

Tần số thoát bẫy của monovacancy trong các biểu thức trên.

$$v_v^{(1),(2)} = \frac{kT_{(1),(2)}}{h} \exp\left(-\frac{\epsilon}{kT_{(1),(2)}}\right) \quad (30)$$

Kết quả tính toán năng lượng hình thành monovacancy và divacancy được tính toán từ số liệu trong [ 4] và phương trình (29). Kết quả được cho trong bảng sau.

Sự phụ thuộc của tốc độ bẫy vào nhiệt độ.	$E_v^F$ (eV)	$E_v^{F*}$ (eV)	$E_d^F$ (eV) có tính đến sự thoát bẫy của monovacancy
-1/2	0.626±0.045	0.337± 0.101	0.984± 0.150
0	0.578±0.054	0.289± 0.198	0.956±0.120
1/2	0.546±0.020	0.242± 0.096	0.923±0.118

Bảng 3. kết quả năng lượng hình thành monovacancy và divacancy trong Al

### 3. Nồng độ divacancy tương đối xuất hiện trong mẫu kim loại Al :

Với kết quả tính năng lượng hình thành divacancy trong bảng 3, chọn giá trị ứng với trường hợp tốc độ bẫy không phụ thuộc vào nhiệt độ kết hợp với phương trình (26), chúng tôi có bảng số liệu sau:

T(°C)	400	450	500	550	600	650	700	750	800	850	900
$C_d/C_{od}$	$7,2 \cdot 10^{-8}$	$2,3 \cdot 10^{-7}$	$6,0 \cdot 10^{-7}$	$1,4 \cdot 10^{-6}$	$3,1 \cdot 10^{-6}$	$6,2 \cdot 10^{-6}$	$1,5 \cdot 10^{-5}$	$2,0 \cdot 10^{-5}$	$3,3 \cdot 10^{-5}$	$5,3 \cdot 10^{-5}$	$8,0 \cdot 10^{-5}$

Bảng 4. Nồng độ tương đối của divacancy trong Al với năng lượng hình thành divacancy  $E_d^F = 0,956$  (eV)

### III. KẾT LUẬN

Tại nhiệt độ 400°C khi nồng độ monovacancy trong Al đạt đến giá trị  $10^{-4}$  thì tốc độ huỷ positron bảo hòa nhưng trên thực tế tốc độ huỷ vẫn gia tăng, lý do có thể là khi nồng độ monovacancy đạt đến giá trị bảo hòa, các monovacancy gần nhau có thể liên kết lại tạo thành divacancy, theo kết tính của bảng 5 cho thấy nồng độ divacancy trong kim loại Al tăng nhanh theo nhiệt độ, chính vì lý do đó sự hình thành divacancy trên khoảng nhiệt độ này cần được quan tâm

trong quá trình tính toán. Nói tóm lại khi tính toán nồng độ hình thành vacancy tại nhiệt độ cao chúng ta cần phải quan tâm đến hiệu ứng divacancy vì các divacancy này sẽ ảnh hưởng mạnh đến cấu trúc và tính bền vững của kim loại.

**STUDY OF CONCENTRATION OF DIVACANCY IN METAL Al BY APPLYING OF THE POSITRON TRAPPING MODEL WITH DETRAPPING EFFECT OF MONOVACANCY**

**Chau Van Tao – Mai Van Nhon – Le Tan Hau – Phan Quoc Huy**

*ABSTRACT: By applying the positron trapping model (PTM) for metal Al with monovacancy, divacancy, detrapping effect of positron for monovacancy, the formation energy of monovacancy and divacancy are estimated. By using the value of formation energy of divacancy in the case with the trap rate depends on temperature is  $E_d^F = 0,956 \pm 0,120$  (eV) the fraction of concentrate of divacancy is estimated at differently temperatures. These results are available for researching stable structure of metal Al and its alloy*

**TÀI LIỆU THAM KHẢO**

- [1]. Maosao Doyama and R.R Hasiyuti - *Study of lattice defects by mean of positron annihilation* 148-V4 (1989).
- [2]. Chau Van Tao – Xiong Liang Yeu “*The positron trapping model for studying Cu and Cu-0.5%at.Ge*” Preprint ICTP 382/1993
- [3]. Chau Van Tao “*Áp dụng positron trong nghiên cứu khuyết tật của kim loại và hợp kim*” Luận án ThS 1996 ĐHKHTN TP. HCM
- [4]. Chau van Tao, Kieu Tien Dung “*the positron trapping model with detrapping effect for calculating the formation energy of monovacancy in some metals*” Preprint Melbourne University of Australia 12/1998
- [5]. Chau Van Tao-Mai Van Nhon- Pham Anh Tu “*Áp dụng mô hình bẫy positron có tính sự thoát bẫy tính năng lượng hình thành monovacancy trong một số kim loại*” 44 Vol1, No. 5 1998
- [6]. Chau Van Tao, Mai Van Nhon, Pham Anh Tú “*Application of the positron trapping model with detrapping effect to study concentration of monovacancy in metal Cu*” Journal of Science & technology development, 9 V2, No 1-1999