
Araştırma Makalesi / Research Article

Süper Örgülü Yapıların Nano-Topak Özelliklerinin Benzetim Yöntemi İle İncelenmesi

Fatih Ahmet ÇELİK*

Bitlis Eren Üniversitesi, Fen-Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü, Bitlis

Özet

Bu çalışmada, Parinello-Rahman Moleküler Dinamik (MD) yöntemi kullanılarak süper örgü kristal yapılı CuNi (Cu-%10 Ni) ve NiAl(Ni-%50 Ni) ikili alaşım sistemleri modellenmiştir. Model sistemlerin yapısal özellikleri amorf fazdan kristal faza dönüşüm sürecinde incelenmiştir. Sistemlerdeki kısa-mesafe düzeni ve nano-topak özellikleri belirleyen Honeycutt ve Andersen (HA) metodu ilk defa süper alaşımların yapısal özelliklerini ayırt etmek için kullanılmıştır.

Anahtar Kelimeler: Süper örgü, Nanoboyut, Moleküler dinamik benzetim, Honeycutt-Andersen metodu.

Investigation Of Nano-Cluster Properties Of Super Lattice Structures With Simulation Method

Abstract

In this study, CuNi (Cu-%10 Ni) and NiAl (Ni-%50 Al) binary alloy systems which are constructed by super lattice crystal have been modelled by using Parinello-Rahman molecular dynamic (MD) simulation method. The structural properties of model systems have been investigated transformation process from amorphous phase to crystal phase. Honeycutt-Andersen (HA) method which is determine the short range order and nano-cluster properties in the systems has been used for distinguish the structural properties of super alloys.

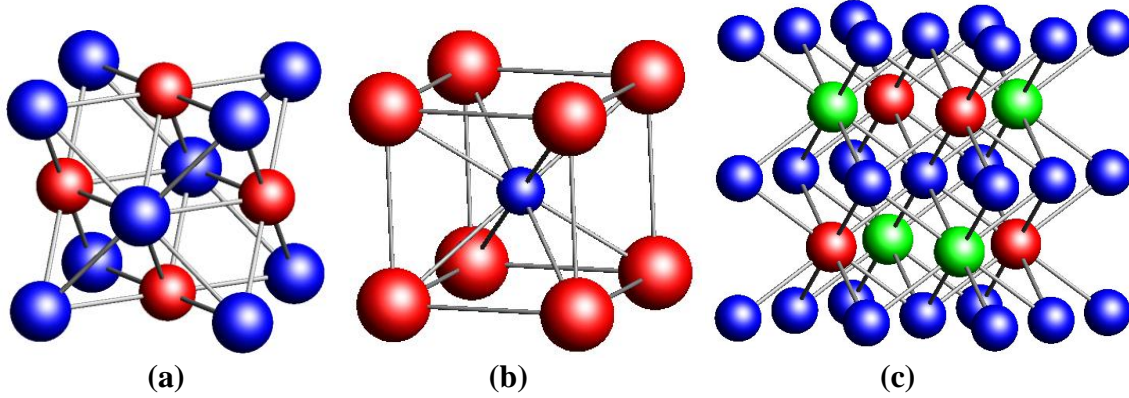
Keywords: Super lattice, Nanosize, Molecular dynamics simulation, Honeycutt-Andersen (HA) method.

1. Giriş

Katı çözeltilerin pek çoğu düşük sıcaklıklarda düzenli yapılar meydana getirir. Bu yapıların oluşumu sırasında atomlar örgü noktalarına rastgele değil de belirli bir düzen içinde yerleşir. AB kompozisyonlu düzensiz bir alaşımda belirli bir atomik konuma ya A atomu ya da B atomu rastgele yerleşir. Kritik bir sıcaklıktan sonra rastgelelik hâkimdir. Kritik sıcaklığın hemen üzerindeki yeterli kompozisyona sahip bölgelerde ne tam düzenlilik ne de tam düzensizlik mevcuttur. Bununla birlikte, düzensiz yapı içerisinde birinci komşuluk, ikinci komşuluk ve hatta üçüncü komşuluk sıralamasında bir düzen olabilir. Bu durum kısa mesafeli düzen olarak bilinir. Alaşımlarda uzun veya kısa mesafeli düzenliliğin olup olmadığı mekanik, ısısal, fiziksel özelliklerden ve x-ışınları, elektron veya nötron difraksiyonlarından tespit edilebilir [1].

Süper örgüler düşük sıcaklıklarda uzun mesafeli düzene sahiptirler ve genellikle kompozisyonları AB veya AB₃ gibi basit bir formül ile ifade edilir. Süper örgü türlerinin çoğu üç temel yapı ile tanımlanabilir. Bu yapılar FCC (A1), BCC (A2) ve HCP (A3) dir. Düzensiz A2 yapısıyla yakından ilişkili olan süper örgüler sırasıyla düzenli beta-brass CuZn (B2), düzenli Fe₃Al (DO₃) ve Heusler alaşımı olarak bilinen Cu₂MnAl (L2₁) türündeki süper örgülerdir. Bazı süper örgülerin üç boyutta gösterimi Şekil 1 de verilmiştir.

* Sorumlu yazar: facelik@beu.edu.tr



Şekil 1. Bazı süper örgü türlerinin üç boyutlu gösterimi a)L1₀ b) B2 c)DO₃ türü süper örgüyle yakından ilgili olan L2₁ (her bir renk farklı türde atomları temsil etmektedir)

2. Materyal ve Metot

2.1. Moleküler Dinamik Benzetimi

Moleküler dinamik benzetim yöntemi, klasik etkileşimleri dikkate alarak bilgisayar üzerinde bir dizi hesaplama yaptıktan sonra sistemin mikroskobik veya makroskobik yapısı hakkında bilgiler verir [28]. Klasik MD yöntemi, sabit hacimli (V), sabit parçacık sayılı (N) ve sabit enerjili (E) sistemlere uygulanmaktadır. Bu yöntem de; kübik bir hesaplama hücresi (MD hücresi – MDH) içine yerleştirilen atomların birbirleri üzerindeki kuvvetleri, potansiyel enerji fonksiyonları yardımıyla hesaplanarak, sistemin hareket denklemleri sayısal olarak çözülür [2]. Bununla birlikte MD yöntemi, 1981 yılında Parrinello ve Rahman tarafından sistemin hacim ve şekilce değişimi dikkate alınarak geliştirilmiştir [2]. Bir moleküler dinamik benzetimi genel olarak; hazırlık, integrasyon ve dengeleme, sonuçların alınması ve analizi olmak üzere üç adımda planlanır [3]. *İlk adımda*, bir başlangıç değer problemi haline getirilmiş hareket denklemleri için; parçacıkların ilk konumları, ilk hızları tanımlanır ve sistemin başlangıç şartları oluşturulur. *İkinci adımda*, çözülmeye hazır hareket denklemleri, çeşitli sayısal integrasyon algoritmaları yardımıyla bilgisayarda çözümlenerek, sistemin başlangıçta tanımlanan termodinamik şartları için faz uzayında minimum enerjili noktaya hareket etmesi ve orada durulması sağlanır. *Son adımda* ise, dengeye yerleşmiş sistem üzerinde çeşitli ölçümler yapılarak veriler elde edilir.

Hacim değişimine bağlı madde özelliklerinin veya davranışlarının MD benzetimleri ile incelenmesi, ilk defa Andersen tarafından ileri sürülen izotropik hacim değişiminin sağlandığı MD yöntemi ile mümkün olmuştur [4]. Parrinello ve Rahman MD hücre eksenlerini birbirinden bağımsız zamanın fonksiyonu olan $A(t)$, $B(t)$, $C(t)$ şeklinde üç vektörle tanımlamışlardır.

2.2. Gömülmüş Atom Metodu (Embedded Atom Method – EAM)

Daw ve Baskes tarafından orijinal olarak geliştirilen *Gömülmüş Atom Metodu*nda bir kristalin toplam enerjisi[5],

$$E_{top} = \frac{1}{2} \sum_{\substack{i,j \\ (i \neq j)}} \phi_{ij}(R_{ij}) + \sum_i F_i[\rho_i] \quad (1)$$

şeklinde ifade edilmektedir. Bu eşitlikte ilk terim ϕ_{ij} , i ve j atomları arasındaki iki cisim etkileşme potansiyeli, ikinci terim $F_i[\rho_i]$, ρ_i yük yoğunluğuna bağlı gömme fonksiyonudur. Bir i atomunun bulunduğu konumdaki toplam yük yoğunluğu, sistemdeki diğer atomların yük yoğunluklarının katkısından oluşur [5] ve aşağıdaki gibi verilir;

$$\rho_i = \sum_{j=(\neq i)}^N \rho_j(r_{ij}) \quad (2)$$

Yük yoğunluğuna bağlı gömme enerjisi, atomun iç kabuklarındaki elektronlara bağlı değildir. Sadece valans elektronlarının katkısıyla meydana gelir. Gömülmüş atom modeli ile yapılan yaklaşımların geçerliliği, gömme enerjisi terimindeki yük yoğunluğunun tam olarak belirlenmesine bağlıdır. Yük yoğunluğunun belirlenmesinde çeşitli zorluklarla karşılaşılır. Bu yüzden birçok yoğunluk ifadesi tanımlanmıştır. Bazı fonksiyonlara göre yük yoğunluğu, elektron dalga fonksiyonlarından kuantum mekaniksel olarak da elde edilebilir [5].

2.3. Radyal Dağılım Fonksiyonları

Maddelerin yapısal özelliklerinin belirlenmesinde büyük bir öneme sahip olan radyal dağılım fonksiyonunu madde fazları, atomların uzayda dizilişleri ve atomlar arasındaki uzaklık ilişkilerine bağlı olduğundan, çoğu zaman maddenin üç halini mukayese etmek amacıyla aynı şekil üzerinde bir arada vermek daha uygundur [3]. Orijinde bulunan atomların herhangi biri seçilerek, orijinden $r + dr$ kadar uzaklıkta bulunan r yarıçaplı çember içinde kalan atomların sayısına bakılır. Böylece Δr kalınlığında küresel bir hacim elemanı içindeki parçacık sayısı (koordinasyon sayısı) $n(r)$ olmak üzere radyal dağılım fonksiyonu,

$$g(r) = \frac{\Omega}{N^2} \left\langle \frac{\sum_i n_i(r)}{4\pi r^2 \Delta r} \right\rangle \quad (3)$$

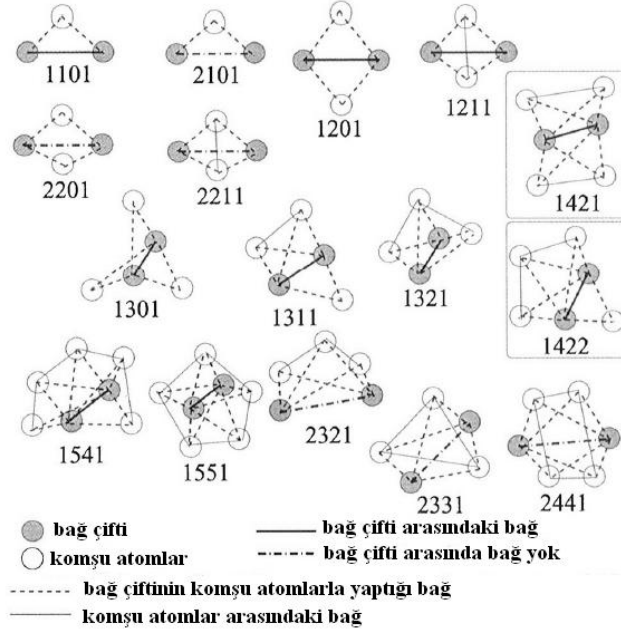
şeklinde tanımlanır. İdeal bir FCC birim hücreli kristal için Radyal Dağılım Fonksiyonları (RDF) eğrisi en yakın komşu atomlar arasındaki uzaklığın $1, \sqrt{2}, \sqrt{3}, \sqrt{4} \dots$ ve mükemmel bir BCC kristali için $1, \sqrt{4/3}, \sqrt{8/3}, \sqrt{11/3} \dots$ katlarındaki uzaklıklarında keskin piklere sahiptir. Atomik titreşim genliklerinin artması halinde piklerin keskinliği kaybolur [3].

2.4. Honeycutt-Andersen (HA) Metodu

Genellikle 2-7 atom sayısına sahip bu tür topakların mikroskobik ölçekte incelenmesi ve bunların farklı şartlardaki davranışlarının gözlenmesi oldukça zordur. Özellikle, uzun-mesafe düzeni göstermeyen camsı yapılarda ve sıvılarda bu tür topakların yapı analizini yapmak için Honeycutt ve Andersen [6] tarafından geliştirilen bir metot mevcuttur. Bu metotta atomik topaktaki yerel yapı ($ijkl$) şeklinde dört temel indis ile tanımlanır.

1. i indisi, A-B (mono-atomik sistemde A-A) şeklinde bir atom çifti varsa ve bu atomlar arasında bağlanma varsa 1 bağlanma yok ise 2 değerini alacağını gösterir.
2. j , bu atom çifti tarafından paylaşılan yakın-komşu sayısıdır.
3. k , yakın komşular arasında paylaşılan bağ sayısıdır.
4. l , eğer ilk üç indis aynı fakat bağ geometrileri farklı ise bu durumlar arasındaki farklılığı (özel ayırt edici indis) belirtir.

HA analizine göre, 1551 ideal Icosahedral (ICOS) yapısını, 1541 ve 1431 ise sıvı ve amorf yapıdaki defekte olmuş (ideal olmayan) ICOS düzenin belirlenmesinde kullanılır. 1421 karakteristik yüzey merkezli kübik (FCC), 1422 hegzagonal sıkı paket (HCP) yapısı ile karakterize edilir. 1661 ve 1441 cisim merkezli kübik (BCC) yapısını temsil ederler. 1201, 1211, 1301, 1311, 1321, 1331 vb. yapılar ise kısa-mesafe düzene sahiptirler ve bu nedenle sıvı faz içindeki temel mikro-topakları temsil ederler. Tüm bu sınıflandırmalarda, iki atomun bağ yapısı yapmadığı ya da kök çift (root-pair) olması ve bu bağ yapan atomların komşu atomlarla olan ilişkisi, RDF nun birinci maksimum ve ikinci maksimum arasında kalan bir bölgeye karşılık gelen kesim (cut-off) uzaklığı ile belirlenir. Bazı bağlı çiftlerin şematik gösterimi Şekil 2 de verilmiştir.



Şekil 2. Bazı bağlı ve bağırsız çiftleri şematik gösterimi

2.5. Bağ Yönelim Düzeni (BYD) Parametrelerinin Temel Bağlıları

Bir sistemi meydana getiren atomik topakların yapısal ve simetrik özelliklerini belirlemede bağ yönelim düzeni parametrelerinden yararlanılabilir. Bunun için, parçacıkların yerel düzeni hakkında temel bilgilerin bilinmesi gerekmektedir. Özellikle küresel simetrik parçacıklar için bağ yönelim düzeni ve öteleme düzeni olmak üzere iki temel yapı düzeni mevcuttur [7]. Bağ yönelim düzeni, merkezi bir parçacık ve onun en yakın komşuları arasındaki bağ açıları (seçilen referans eksenine göre) ile ilgili olan temel bağlantıları içerir. Her bir parçacığın en yakın komşuları, RDF nun birinci maksimum ve ikinci maksimum arasında kalan bir minimum bölgeye karşılık gelen kesim (cut-off) uzaklığı ile belirlenir. Merkez atomdan her biri bir r_{ij} uzaklıkta bulunan komşu atom bir bağ olarak tanımlanır ve bu bağ

$$Q_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_{ij}) = Y_{lm}(\theta_{ij}(\hat{\mathbf{r}}), \phi_{ij}(\hat{\mathbf{r}})) \quad (4)$$

şeklinde bir ifade ile tanımlanır [7]. Burada Y_{lm} küresel harmonikler ve $\hat{\mathbf{r}}$ ise her bir bağa paralel olan birim vektördür. θ_{ij} ve ϕ_{ij} ise sırasıyla polar ve azimuthal açılarıdır. Bu açıları Denklem (4) de verilen küresel ve kartezyen koordinat sistemleri dönüşümünden bulunur. Merkezi atomun yerel çevresi yerel (*local*) bağ yönelim düzeni parametresiyle [7]

$$\bar{Q}_{lm}(i) = \frac{1}{N_{kom}} \sum_{j=1}^{N_{kom}} Q_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_{ij}) \quad (5)$$

ifade edilir. Burada, N_{kom} topak içindeki merkez atomunun kesim uzaklığı içinde kalan komşu sayısıdır. Diğer taraftan, her bir topağın $\bar{Q}_{lm}(i)$ değerlerinin toplamı sistemde mevcut tüm N tane parçacık üzerinden ortalaması alındığında *global* bağ yönelim düzeni parametresi elde edilir ve bunun matematiksel ifadesi [7],

$$\bar{Q}_{lm} = \frac{\sum_{i=1}^N N_b(i) \bar{Q}_{lm}(i)}{\sum_{i=1}^N N_b(i)} \quad (6)$$

şeklindedir. İkinci mertebeden değişmezlik (second order invariant).

$$Q_l = \left[\frac{4\pi}{2l+1} \sum_{m=-l}^l |\bar{Q}_{lm}(i)|^2 \right]^{1/2} \quad (7)$$

şeklindedir. Üçüncü mertebeden değişmezlik (third order invariant)

$$W_l = \sum_{\substack{m_1, m_2, m_3 \\ m_1+m_2+m_3=0}} \begin{bmatrix} l & l & l \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{bmatrix} \times \bar{Q}_{lm_1} \bar{Q}_{lm_2} \bar{Q}_{lm_3} \quad (8)$$

dir. Burada, $\begin{bmatrix} l & l & l \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{bmatrix}$ Wigner 3j katsayılarıdır [7].

İndirgenmiş (reduced) değişmezlik ise,

$$\hat{W}_l = \frac{W_l}{\left[\sum_{m=-l}^l |\bar{Q}_{lm}(i)|^2 \right]^{3/2}} \quad (9)$$

şeklinde verilir.

Herhangi bir parçacık ya da çok parçacıklı bir sistemin konumlarını belirleyen kartezyen koordinat sisteminden onların küresel koordinat sisteminde açısız konumlarını belirlemek için küresel harmonikleri kullanmak yeterli olacaktır. Üç boyutta bağ yönelim düzeni parametreleri ilk olarak Frank tarafından kullanılmış ve sonra Steinhardt vd. tarafından benzetim çalışmalarında kullanılmıştır[7]. Tüm bu atomik topaklar için hesaplanan yerel $\bar{Q}_{lm}(i)$ parametresinin sayısal değerleri Denklem (7) ve (9) da verilen ifadelerde yerlerine yazılarak farklı l değerleri için quadratic (Q_l) ile indirgenmiş değişmezlik (\hat{W}_l) parametrelerinin sayısal değerleri hesaplanabilir ve böylece bu parametrelerden elde edilecek değerler örgülerin yapısal farklılıkları belirlemede kullanılır. Böylece, herhangi bir MD sistemini meydana getiren atomik topakların hangi yapıya ait olduğu bu parametrelerin sayısal değerleri yardımı ile bulunabilir. Tablo 1 de kristal yapılar (örgüler) için literatürde bilinen BYD parametrelerinin değerleri verilmiştir [7].

Tablo 1. En ideal yapıda bazı örgüler için Q_l ve \hat{W}_l değerleri

Örgü	Q_4	Q_6	\hat{W}_4	\hat{W}_6
BCC	0,0363696	0,5106882	0,1593174	0,0131606
FCC	0,1909407	0,5745243	-0,1593174	-0,0131606
HCP	0,0972222	0,4847617	0,1340970	-0,0124420

3.Bulgular ve Tartışma

Düşük sıcaklıkta tavlama işlemine uygun olmasının yanında, uygun korozyon direnci, mükemmele yakın elektriksel ve termal iletkenliklerinden dolayı CuNi alaşımları üzerinde yapılmış pek çok çalışma mevcuttur[8,9]. Bununla birlikte, CuNi alaşımlarının düşük sıcaklıklarda tavlama işlemlerinde Cu elementinin konsantrasyonunun arttıkça tane boyutlarının azaldığı deneysel olarak bilinmektedir[10]. Tane boyutlarının azalması çekirdeklenme için favori yerler olan tane sınırlarının sayısını arttıracığı için, Cu elementinin konsantrasyonu yüksek tutuldu. NiAl alaşımlarının ise şekil

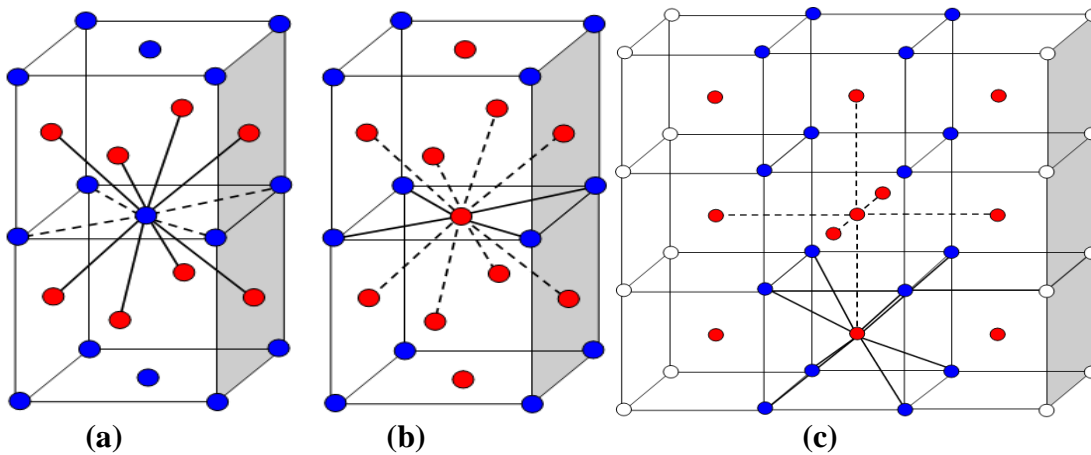
hatırlama karakteristiklerinin dışında, yüksek erime sıcaklığından dolayı önemli fiziksel özelliklerinin yüksek sıcaklık bölgesinde incelendiği görülmektedir [11]. Özellikle B2 süper örgü yapısına sahip Ni-%50Al alaşımının kristalleşme ve tane büyüme gibi mikro yapısal davranışlarının oda sıcaklığının üstünde daha yüksek sıcaklıklarda incelendiği belirlenmiştir [12]. Bu çalışmada, oda sıcaklığında amorf fazdan itibaren bekletilerek kristalleşme süreci, atomik topakların yapısal özellikleri kullanılarak belirlenmeye çalışıldı.

Bununla birlikte, model alaşım sistemlerinin kompozisyonlarına bağlı olarak atomların MD hücresine yerleşimi ve modelleme çalışmalarında kullanılan PEF parametreleri literatürden alındı[13]. CuNi alaşımı için 1 MD adımı 6,65fs ve NiAl alaşımı için 1 MD adımı 5,5fs olarak belirlendi. Her iki model sistem için MD yöntemle belirlenen erime sıcaklıklarından itibaren (NiAl için 1300K ve CuNi için 1200K) 10^{13} K/s lik soğutma hızı uygulanarak 300K sıcaklığına kadar 100K aralıklarla sıcaklık azaltılmıştır ve sistemlerin amorf faza dönüşümü sağlandı. Amorf fazda 5×10^5 MD adımı beklenerek sistemlerin kristal faza dönüşümü incelendi.

HA metodunu kullanarak bir alaşımın süper örgü yapısı hakkında da bilgiler edinilebilir. Tüm atomların aynı tür olduğu bir FCC örgüsünde 13 atomlu sıkı-paket FCC topağı, 12 tane 1421 bağlı çiftine sahiptir. Eğer örgü ikili bir alaşım ise, süper örgünün türüne göre kök çiftin aynı tür ya da farklı tür atomdan oluşması durumunda süper örgüyü oluşturan 1421 bağlı çiftlerinin sayısı değişir. Bu tanımlamalara göre, $L1_0$ süper örgüsünde kök çiftin farklı tür atom olduğu 8 ve kök çiftin aynı tür atom olduğu 4 olmak üzere toplamda 12 tane 1421 bağlı çiftine sahip bir FCC tabanlı sıkı paket topağı oluşur. $L1_2$ süper örgüsünde ise, örgüsünde kök çiftin farklı tür atom olduğu 4 ve kök çiftin aynı tür atom olduğu 8 tane 1421 bağlı çiftine sahip bir FCC tabanlı sıkı paket topağı meydana gelir.

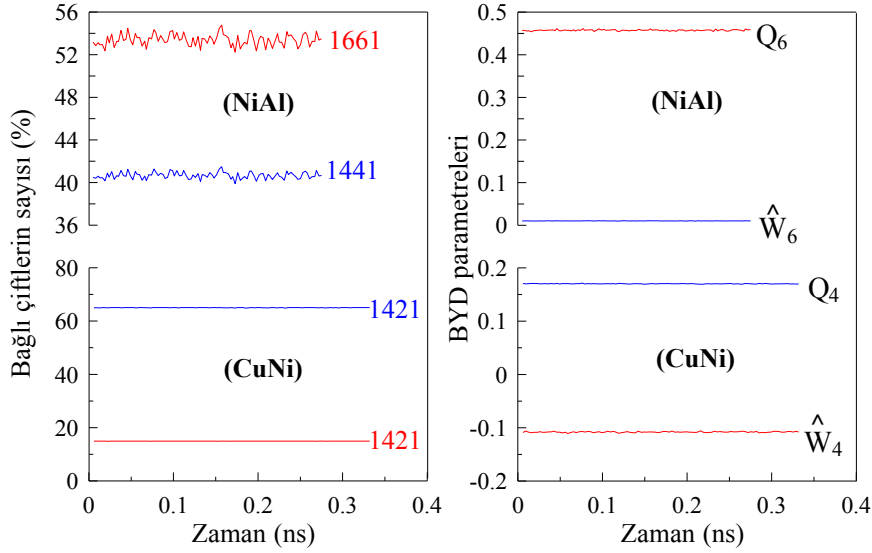
Benzer şekilde, merkez atom dâhil 15 atomlu bir BCC tabanlı B2 süper örgülü sıkı-paket topağını meydana getiren 1441 ve 1661 bağlı çiftlerinin sayısı sırasıyla 6 (%40) ve 8 (%53) dir. B2 süper örgüsünde ise kök çiftin aynı tür atom olması yalnızca 1441 bağlı çiftinde olup, kök çiftin farklı tür atom türünde olması ise yalnızca 1661 bağlı çiftinde görülmektedir. Şekil 3, bu tür süper örgülerde oluşan kök çiftin farklı ve aynı tür atomlu olduğu bağlı çiftleri göstermektedir.

Şekil 4, 300K sıcaklıkta FCC süper örgü tabanlı CuNi ve 500K sıcaklıkta BCC süper örgü tabanlı NiAl model alaşım sistemlerinin süper örgü yapılarında kurulup belirli bir zaman bekletilmesi ile elde edilen bağlı çiftlerin sayısının ve global BYD parametre değerlerinin zamana karşı değişimini göstermektedir. Ni%50Al alaşım sistemi BCC tabanlı B2 süper örgü yapısı, küp köşelerine Ni ve aynı sayıdaki Al atomları ise küp merkezlerine yerleştirilerek kurulmuştur. Eşit kompozisyonlu B2 süper örgüsünde bağlı çifti oluşturan kök çiftin aynı tür atomlu olması 1441 bağlı çiftinde, farklı tür atomlu olması ise 1661 bağlı çiftinde mümkün olmaktadır. Şekilde görüldüğü gibi, kök çiftin aynı tür atom olduğu 1441 bağlı çiftlerin sistemde bulunma yüzdesi yaklaşık %40 ve kök çiftin farklı tür atom olduğu 1661 bağlı çiftleri sistemde bulunma yüzdesi yaklaşık %53'dür. Bu yüzdeler incelendiğinde, sistemin yukarıda da tartışıldığı üzere, kesinlikle B2 süper alaşım türünde kararlı kaldığı söylenebilir.

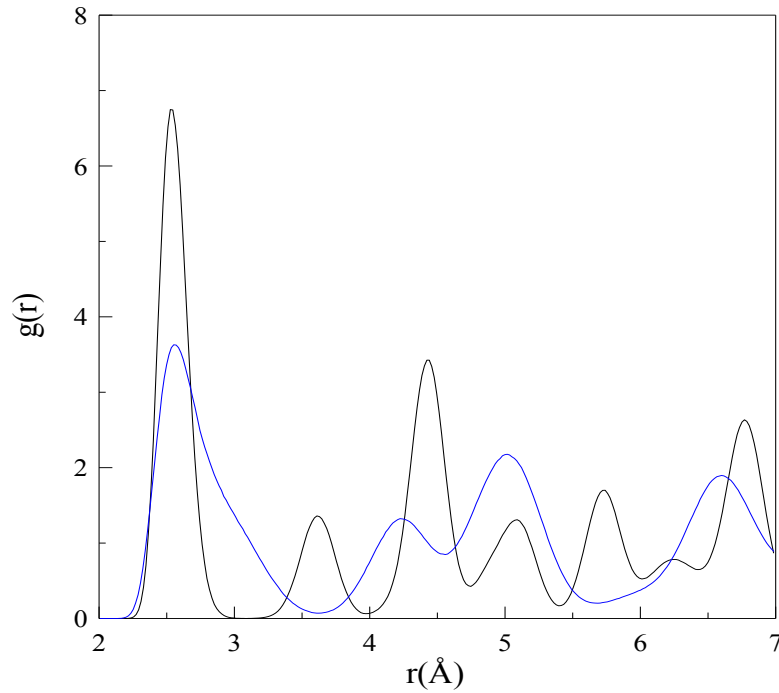


Şekil 3. Süper örgülerdeki kök çiftlere ait kök çiftler **a)** $L1_0$ türü süper örgü **b)** $L1_2$ türü süper örgü **c)** B2 türü süper örgü (kalın düz çizgiler kök çiftin farklı tür atomdan oluştuğu, kısa çizgili çizgiler ise aynı tür atomdan oluştuğunu göstermektedir)

Bunun yanı sıra, NiAl alaşımı için hesaplanan BYD parametre değerleri bekletme sürecinde sabit kalmaktadır ve Tablo 1 de verilen değerler ile karşılaştırıldığında, yine sistemin yapısal olarak BCC örgüde kararlı kaldığı görülmektedir. Cu%10Ni model alaşım sisteminde ise, kök çiftin aynı tür atom olduğu 1421 bağı çiftlerin sayısı fazla olduğundan, aynı tür atomların büyük oranda örgünün köşe veya yüzey konumlarına yerleştiği FCC tabanlı süper örgüde kurulmuştur. Ni elementinin bileşeninin yüzdesinin çok az olması, 1421 bağı çiftin kök çift atom türünün Cu-Ni olacak şekilde düzenlenme ihtimalini azaltmıştır. Aynı zamanda BYD parametre değerleri bekletme sürecinde sabit kalmaktadır ve Tablo 1 de verilen değerler ile karşılaştırıldığında, sistemin FCC tabanlı süper örgüde kararlı kaldığını görülmektedir.



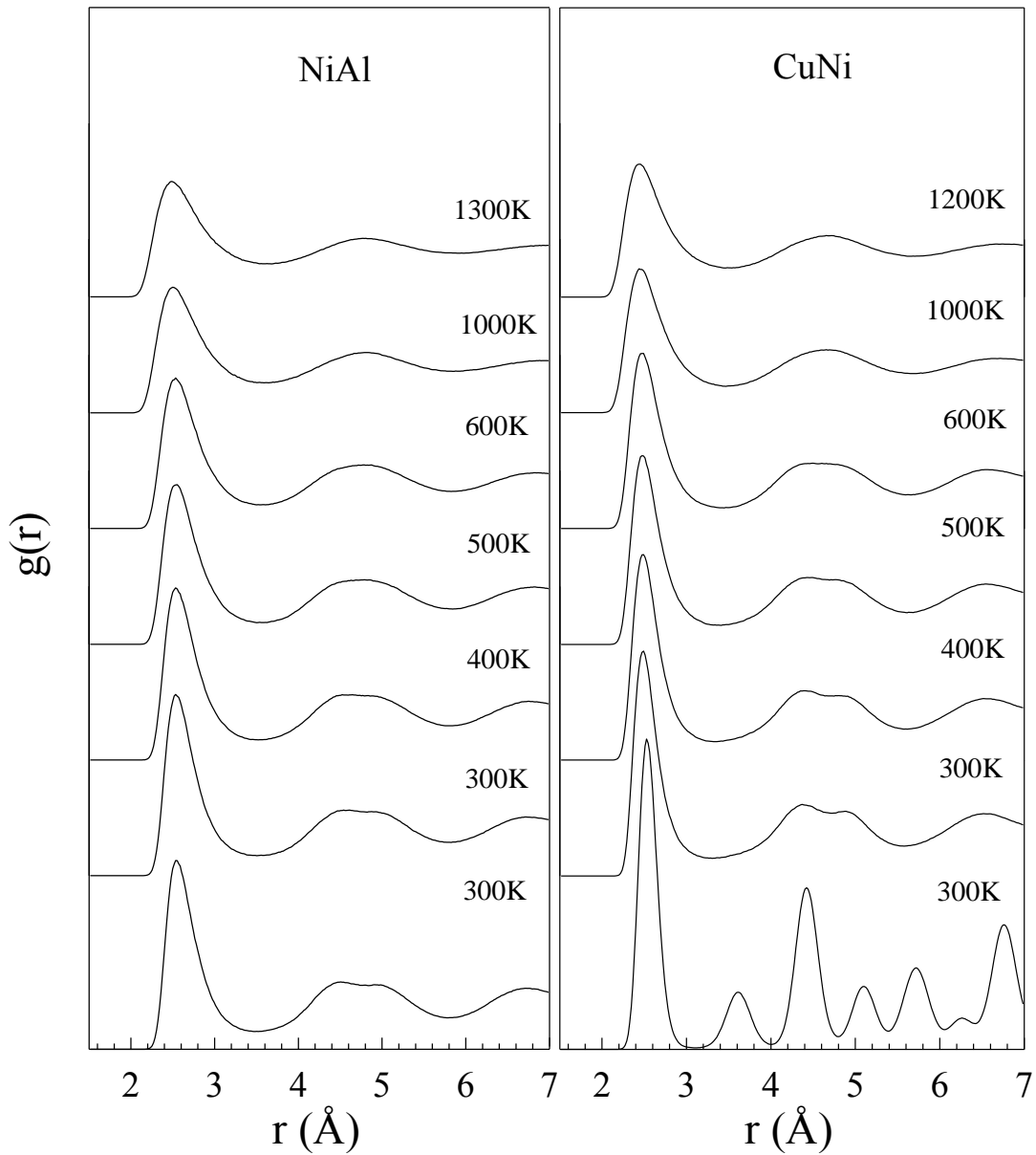
Şekil 4. Model alaşım sistemlerinin süper örgü yapısında kurulup 5×10^4 MD adım bekletilmesi (CuNi için 300K, NiAl için 500K sıcaklıklarında) ile elde edilen bağı çiftlerin sayısının ve BYD parametre değerlerinin zamana karşı değişimini (kırmızı eğriler kök çiftin farklı tür atom, mavi eğriler ise aynı tür atom durumunu gösterir).



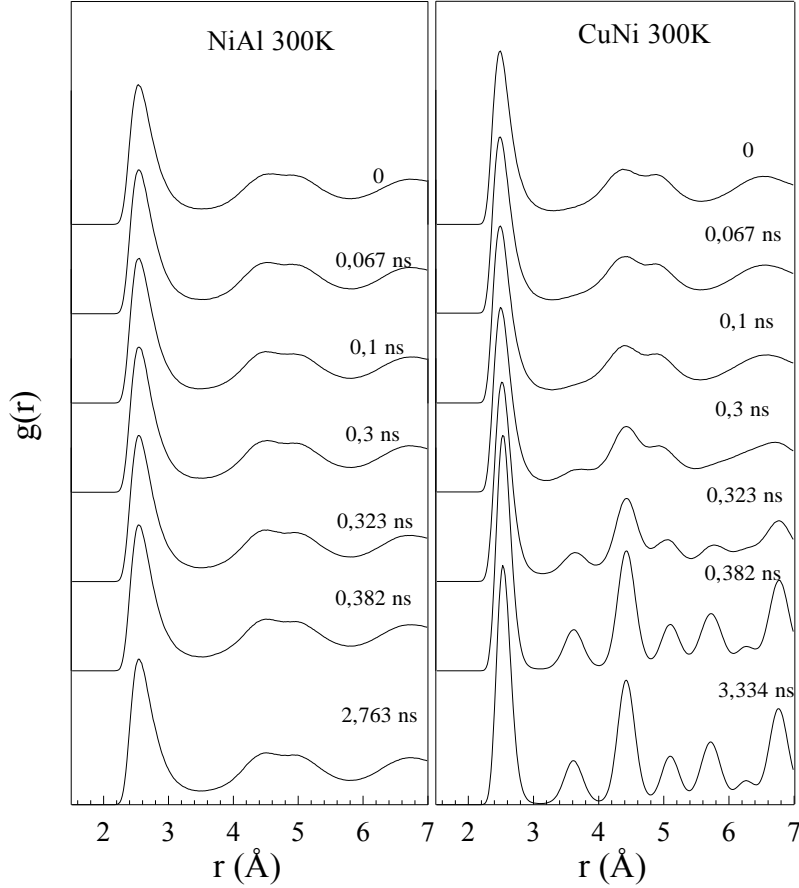
Şekil 5. Model alaşım sistemlerinin 300K ve 500K sıcaklıklarda elde edilen RDF eğrileri (siyah eğriler CuNi, mavi eğriler NiAl alaşımını temsil eder).

Şekil 5, belirli atomik uzaklıklarda RDF eğrilerin belirli atomik uzaklıklarda verdiği piklerden anlaşıldığı üzere, model alaşım sistemlerinden NiAl alaşımının BCC tabanlı B2 ve CuNi alaşımının FCC tabanlı süper örgü yapısında kararlı kaldığını göstermektedir. Model alaşım sistemleri bu süper örgü yapısında kurulduktan sonra MD yöntemle belirlenen erime sıcaklıklarına kadar ısıtılmış ve sıvı fazda dengeletildikten sonra sıvı fazdan itibaren yüksek bir soğutma hızı ile amorf faza dönüşüm gerçekleştiği gözlemlendi.

Şekil 6, model alaşım sistemleri için sıvı fazda 1×10^4 MD adımı bekletilerek soğutma sürecinde farklı sıcaklıklarda ve Şekil 7 ise, 300K sıcaklıkta amorf fazda belirli zamanlarda alınan RDF eğrilerini göstermektedir. Model alaşım sistemlerinin kristalleşme süreçleri incelendiğinde, 300K de Ni-%50Al alaşımında amorf fazdan kristal faza dönüşüm gerçekleşmemiş, buna rağmen Cu-%10Ni alaşımının ise kristal faza dönüştüğü tespit edildi. CuNi alaşımı için amorf fazda 5×10^5 MD adımı beklenildiği göz önüne alınırsa belirli bir zamandan sonra RDF kristal piklerinin oluşmaya başladığı ve zamanla bu piklerin belirli atomik uzaklıklarda şiddetlerinin (genlikleri) artarak kararlı kristal fazın meydana geldiği belirlendi. Fakat aynı süreçlerde NiAl alaşım sisteminde herhangi bir kristal piki gözlemlenmedi.



Şekil 6. Model alaşım sistemleri için soğutma sürecinde farklı sıcaklıklarda elde edilen RDF eğrileri.



Şekil 7. Model alaşım sistemleri için amorf fazdan itibaren farklı zamanlarda elde edilen RDF eğrileri.

Ni saf metalik sistemin düşük sıcaklıkta amorf fazda bekletilerek kristalleşmesi ve buna karşın NiAl alaşım sisteminin aynı sıcaklıkta ve süreçte herhangi bir kristal faza dönüşüm gerçekleşmemesi, saf metallerin alaşımları ile karşılaştırıldığında daha düşük yeniden kristalleşme sıcaklığına sahip olduğu sonucunu verir. Bu sonucun deneysel çalışmalarla uyumlu olduğu tespit edilmiştir [14,15].

4.Sonuç ve Öneriler

Bir metal veya alaşımının sıvı fazında katılaşma sıcaklığının altına soğutulduğu zaman katılaşması beklenir, çünkü katının kristal yapısı ve kristal fazındaki enerjisi sıvının enerjisinden daha azdır. Sistemin sıcaklığının azalması ile birlikte çekirdeklenmenin başlaması için katı ile sıvıyı ayıran bir ara yüzeyin oluşturulması gerekmektedir. Bu ara yüzeyi oluşturan atomik topaklar burada önemli hale gelmektedir. Bu atomik topaklar (gruplar) amorf fazda henüz birer embriyo durumundadır ve birden fazla embriyonun bir araya gelip çekirdekleri oluşturması için bu kristal ara yüzeylerin çok daha fazla oluşumu kaçınılmaz olmaktadır [16-18]. Yerel bölgelerde atomik grupların birleşerek çekirdeklenmelerin başlaması ve bu çekirdeklerin sayısının artarak kristal büyümenin gerçekleşmesi için, embriyoların yapısal özelliklerine ve sistem içinde bulunma sayılarına bağlı olan kritik sayıya ulaşması çok önemli hale gelir. NiAl model alaşımında katılaşma sırasında amorf fazda bulunan kristal embriyoların kristalleşmenin ilk adımını oluşturacak kritik sayılara gelemediği öngörülmüştür. Kritik sayıya ulaşamayarak gerekli büyümeyi sağlayamayan embriyolar, yapının amorf fazda kararlı kalmasını sağlamıştır. Boyut olarak çok küçük olan bu embriyoların hangi yapıyı temsil ettiği ve sistem içindeki sayısını belirlemek için atomik topakları incelemek gereklidir. Bunun içinde HA metodu ile belirlenen kristal yapıları temsil eden bağlı çiftlerin bu embriyoların temel yapısını oluşturduğu düşünülmüş ve her iki model sistem için de kristalleşme sürecini nasıl etkilediği tartışılmıştır.

Teşekkür

Bu çalışma Fırat Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projesi (FÜBAP) 1496 nolu proje kapsamında desteklenmiştir.

Kaynaklar

1. Porter, D.A., Easterling, K.E. 1982. *Phase transformations in metals and alloys*, Second edition, Chapman & Hall. T.J. Press (Padstow) Ltd, UK.
2. Parrinello, M., Rahman, A. 1980. Crystal structure and pair potentials: a molecular-dynamics study, *Phys. Rev. Lett.*,45: 1196-1199.
3. Özgen, S.1997. Sayısal hesaplama yöntemlerinin şekil hatırlamalı alaşımlarda difüzyonsuz faz dönüşümlerine uygulanması. Fırat Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, *Doktora Tezi*, Elazığ.
4. Andersen, H.C. 1980. Molecular dynamics simulations at constant pressure and temperature, *J. Chem. Phys.*,72: 2384.
5. Daw, S., Baskes, M.L. 1984. Embedded-atom method: derivation and application to impurities, surfaces and other defects in metals, *Phys. Rev. B.*,29: 6443-6453.
6. Honeycutt, J.D., Andersen, H.C. 1987. Molecular dynamics study of melting and freezing of small Lennard-Jones clusters, *J. Phys. Chem.*,91: 4950-4963.
7. Steinhardt, P.J., Nelson, D.R., Ronchetti, M. 1983. Bond orientational order in liquids and glasses, *Phys. Rev. B.*,28: 784-804.
8. Mao, X., Fang, F., Yang, F., Jiang, J.,Tan, R. 2009. Effect of annealing on microstructure and properties of CuNi alloy tube, *Journal of Materials Processing Technology*, 209: 2145-2151.
9. Kazanc, S. 2007. Molecular dynamics study of pressure effect on crystallization behavior of amorphous CuNi alloy during isothermal annealing, *Physics Letters A*, 365: 473-477.
10. Li, J.F., Liu, Y.C., Lu, Y.L., Yang, G.C., Zhou, Y.H. 1998. Structural evolution of undercooled Ni-Cu alloys, *Journal of Crystal Growth*, 192: 462-470.
11. Zhou, L.Z., Guo, J.T., Li, G.S., Xiong, L.Y., Wang, S.H., Li, C.G.1999. Investigation of annealing behavior of nanocrystalline NiAl, *Materials & Design*, 18: 373-377.
12. Bystrzycki, J., Varin, R.A., Nowell, M., Kurzydowski, K.J. 2000. Grain boundary character distribution in B2 intermetallics, *Intermetallics*, 8: 1049-1059.
13. Kazanç, S. 2004. Bakır bazlı alaşımlarda termoelastik dönüşümlerin moleküler dinamik benzetimi, Fırat Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, *Doktora Tezi*, Elazığ.
14. Avner, S.H. 1997. *Introduction to physical metallurgy*, Mcgraw-Hill Publihsers, USA.
15. Smith W.F. 2001. *Malzeme bilimi ve mühendisliği*, çeviri:Kınıkoğlu, N.G., üçüncü basımdan çeviri, İstanbul.
16. Schuh, C.A., Hufnagel, T. C., Ramamurty, U.2007. Mechanical behavior of amorphous alloys, *Acta Materialia*, 55: 4067-4109.
17. Lu, K. 1996. Nanocrystalline metals crystallized from amorphous solids: nonocrystallization, structure and properties, *Materials Science and Engineering*, R16: 161-221.
18. Schmelzer, J.W.P. 2005. *Nucleation theory and applications*, Wiley –Vch Verlag GmbH & Co., Weinheim.