

**CuAg SIVI METALİNDE AMORF OLUŞUMUNUN MOLEKÜLER  
DİNAMİK SİMÜLASYONU**

**Burcu BOZKURT ÇIRAK**

**Yüksek Lisans Tezi  
FİZİK ANABİLİM DALI  
ISPARTA 2006**

**T.C.**  
**SÜLEYMAN DEMİREL ÜNİVERSİTESİ**  
**FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**CuAg SIVI METALİNDE AMORF OLUŞUMUNUN**  
**MOLEKÜLER DİNAMİK SİMÜLASYONU**

**Burcu BOZKURT ÇIRAK**

**Yüksek Lisans Tezi**  
**FİZİK ANABİLİM DALI**  
**ISPARTA 2006**

Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürlüğüne

Bu çalışma jürimiz tarafından FİZİK ANABİLİM DALI' nda YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Başkan : Doç. Dr. Ekrem ARTUNÇ

Üye : Doç. Dr. Seyfettin ÇAKMAK

Üye : Doç. Dr. Soner ÖZGEN

ONAY

Bu tez 28/07/2006 tarihinde yapılan tez savunma sınavı sonucunda, yukarıdaki jüri üyeleri tarafından kabul edilmiştir.

...../...../2006

**Prof. Dr. Fatma GÖKTEPE**  
SDÜ Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

**İÇİNDEKİLER**

İÇİNDEKİLER.....	i
ÖZET .....	ii
ABSTRACT .....	iii
TEŞEKKÜR.....	iv
SİMGELER DİZİNİ .....	v
KISALTMALAR DİZİNİ.....	vi
ŞEKİLLER DİZİNİ .....	vii
ÇİZELGELER DİZİNİ .....	viii
1. GİRİŞ .....	1
2. MATERYAL VE METOD .....	4
2.1. Moleküler Dinamik Simülasyonu ve Gömülmüş Atom Modeli.....	4
3. BULGULAR VE TARTIŞMALAR.....	9
3.1 CuAg Alaşımının İncelenmesi.....	9
4. SONUÇLAR.....	18
5. KAYNAKLAR.....	19
6. ÖZGEÇMİŞ.....	21

**ÖZET****CuAg SIVI METALİNDE AMORF OLUŞUMUNUN  
MOLEKÜLER DİNAMİK SİMÜLASYONU****Burcu BOZKURT ÇIRAK**

Çok cisim potansiyellerini tanımlamada yaygın olarak kullanılan yaklaşımlardan biri olan Gömülmüş Atom Metodu (Embedded Atom Model, EAM), atomlar arasındaki fiziksel etkileşimleri modellemek için kullanılır. EAM yaklaşımında kristal içindeki bir atomun enerjisi, itici ve çekici etkileşme fonksiyonuna bağlı olarak hesaplanmaktadır.

Bu tez çalışmasında, CuAg sıvı metalinin hızlı soğutulması sonucu elde edilen amorf yapı, moleküler dinamik simülasyon yöntemi ile incelenmiştir. Cu, Ag ve CuAg için Sutton-Chen EAM fonksiyonlarının  $\epsilon$ ,  $c$ ,  $a_0$ ,  $m$  ve  $n$  parametreleri kullanılmıştır. Simülasyon çalışmasında, CuAg alaşımının 200-1600 K aralığında üç farklı soğutma hızı için bazı termodinamik özellikleri incelenmiştir. CuAg alaşımının erime sıcaklığı ve cam geçişi sıcaklığı için uygun değerler elde edilmiştir.

**ANAHTAR KELİMELER :** Metal camlar, Moleküler Dinamik Simülasyon, Gömülmüş Atom Metodu, Sutton-Chen Potansiyeli

**ABSTRACT****MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION OF AMORPHOUS  
FORMATION IN CuAg LIQUID METAL****Burcu BOZKURT ÇIRAK**

Embedded Atom Method (EAM), which is one of the approaches widely used to describe the many-body interaction potentials, is used to model the physical interactions between the atoms. In EAM, the energy of an atom in a crystal has different applications and outcomes based on its impulsive and attractive interaction functions.

In this thesis, the amorphous structure which resulted from the rapid cooling of CuAg liquid metal alloy was examined by molecular dynamics simulation method. The parameters of Sutton-Chen EAM potentials were used for Cu, Ag and CuAg. During the simulation, alloy of CuAg were studied specific temperature values for 200-1600 K. Melting temperature and glass transition temperature of CuAg alloy were obtained.

**KEY WORDS** : Metal Glasses, Molecular Dynamics Simulation, Embedded Atom Method, Sutton-Chen Potential

## TEŞEKKÜR

“Cu-Ag sıvı Metalinde Amorf Oluşumunun Moleküler Dinamik Simülasyonu” konulu yüksek lisans tezimin her aşamasında yol göstericiliğini ve yardımlarını esirgemeyen danışman hocam Doç.Dr. Seyfettin ÇAKMAK’a teşekkürlerimi sunarım.

MDS programındaki katkılarından dolayı değerli hocam Doç.Dr.Soner ÖZGEN’e teşekkürü bir borç bilirim.

Ayrıca, tezimin yazılması aşamasındaki destek ve yardımlarından dolayı eşim Arş. Gör. Çağrı ÇIRAK’a ve manevi destekleriyle güç bulduğum annem ve babama teşekkür ederim.

Bu çalışma, Süleyman Demirel Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Yönetim Birimi (Proje No:01012-YL-05) tarafından desteklenmiştir.

**SİMGELER DİZİNİ**

- $a$  : kristalin örgü sabiti
- $B_m$  : hacim modülü
- $c$  : kristal özelliklerinden elde edilen boyutsuz sabit
- $E_c$  : kohesif enerji
- $\varepsilon$  : enerji boyutunda bir parametre
- $G(\bar{\rho}_i)$  : EAM' de gömme enerjisini tanımlayan fonksiyon
- $\Phi(r_{ij})$  : ikili etkileşme fonksiyonu
- $m$  : değeri pozitif tamsayı olan potansiyel parametresi
- $n$  : değeri pozitif tamsayı olan potansiyel parametresi
- $r_0$  : denge bağ uzunluğu
- $\bar{\rho}_i$  :  $i$  noktasındaki elektronik yük yoğunluğu
- $\rho(r_{ij})$  : yük yoğunluk fonksiyonu
- $T_g$  : cam geçişi sıcaklığı
- $T_m$  : erime sıcaklığı
- $\Omega$  : denge atomik hacmi ( fcc kristali için  $\Omega = a^3/4$  )



**KISALTMALAR DİZİNİ**

- EAM : Gmlm Atom Metodu
- FS : Finnis-Sinclair
- LJ : Lennard-Jones
- MD : Molekler Dinamik
- MDH : Molekler Dinamik Hcresi
- MSD : Yer deęitirmenin Kare Ortalaması
- PEF : Potansiyel Enerji Fonksiyonu
- PR : Parrinello-Rahman
- RDF : Radyal Daęılım Fonksiyonu
- SC : Sutton-Chen
- SMA : İkinici Moment Yaklaımı
- SRO : Kısa Mesafe Dzeni
- VC : Voter-Chen

## ŞEKİLLER DİZİNİ

<b>Şekil 3.1</b> Ag60-Cu40 alaşımının $4 \times 10^{12}$ K/s ısıtma hızında (300 K sıcaklığında) sıcaklık zaman eğrisi.....	12
<b>Şekil 3.2</b> Ag60-Cu40 alaşımının $4 \times 10^{12}$ K/s ısıtma hızında (300 K sıcaklığında) basınç-zaman eğrisi.....	12
<b>Şekil 3.3</b> Birinci soğutma hızı ( $5 \times 10^{11}$ K/s) için farklı sıcaklıklarda Ag60-Cu40 alaşımının radyal dağılım fonksiyonu $g(r)$ eğrileri.....	13
<b>Şekil 3.4</b> İkinci soğutma hızı ( $1 \times 10^{12}$ K/s ) için farklı sıcaklıklarda Ag60-Cu40 alaşımının radyal dağılım fonksiyonu $g(r)$ eğrileri.....	14
<b>Şekil 3.5</b> Üçüncü soğutma hızı ( $4 \times 10^{12}$ K/s) için farklı sıcaklıklarda Ag60-Cu40 alaşımının radyal dağılım fonksiyonu $g(r)$ eğrileri.....	15
<b>Şekil 3.6</b> Ag60-Cu40 alaşımının ısıtma-soğutma işleminden ( $4 \times 10^{12}$ K/s) elde edilen sıcaklığa bağlı atom başına potansiyel enerji eğrileri.....	16
<b>Şekil 3.7</b> Ag60-Cu40 alaşımının ısıtma-soğutma işleminden ( $4 \times 10^{12}$ K/s) elde edilen sıcaklığa bağlı entalpi eğrileri.....	16
<b>Şekil 3.8</b> Ag60-Cu40 alaşımının ısıtma- soğutma işleminden ( $4 \times 10^{12}$ K/s) elde edilen sıcaklığa bağlı atomik hacim eğrileri.....	17
<b>Şekil 3.9</b> Ag60-Cu40 alaşımının soğutma işleminden elde edilen sıcaklığa bağlı atomik hacim eğrileri.....	17

## ÇİZELGELER DİZİNİ

<b>Çizelge 2.1</b> Ag ve Cu için Sutton-Chen Formunda kullanılan potansiyel parametrelerinin bazı maddeler için değerleri.....	6
--	---

## 1. GİRİŞ

Metal ve metal alaşımları genellikle katı fazda kristal özellik gösterirler. Sıvı fazdaki metal ve metal alaşımına hızlı soğutma tekniği uygulanarak amorf madde elde edilmekte ve elde edilen bu madde kristal yapıya maddelerden farklı özelliklere sahip olmaktadır. Amorf metalik alaşımlar, uzun mesafeli atomik düzene sahip olmayan metaller ve metal alaşımlarından oluşur. Bunlara cam alaşımları veya kristal olmayan alaşımlar da denir. Amorf maddeler, denge dışı işlemlerden geçerek hazırlandıkları için hazırlanan numunelerin özellikleri kullanılan yöntemle bağlıdır. Bu yöntemler genellikle üç kısımda incelenir: a) sıvı fazdan hızlı soğutma, b) katı fazda şekillendirme, c) gaz fazında hızlı yoğunlaştırma (Morigaki, 1999). Camların hazırlanmasında bunlardan ilki kullanılır. Amorf madde, bir sıvının donma noktasının altında kristalleştirilmeden soğutulmasıyla elde edilir (Özgen, 2004., Morigaki, 1999).

Sıvı metalik sistemlerin soğutma şartlarına bağlı olarak farklı mikro yapıya katılaştıkları bilinmektedir. Birçok metal ve metal alaşımına hızlı soğutma tekniği kullanılarak amorf özelliği kazandırılmakta ve bu şekilde üretilen malzemeler, kristal yapıya sistemlerden daha farklı fiziksel özelliklere sahip olmaktadır (Desré, 2001). Hızlı soğutma tekniği, kinetik olarak elverişsiz bir şart içine sokulan maddenin kristalleşmesini engelleyebildiği için birçok metalik alaşımın amorf fazının elde edilmesinde kullanılmaktadır. Sıvı metalden metal cama geçişte atomların büyüklükleri arasındaki farklılık büyük öneme sahiptir. Örneğin, atomların büyüklükleri oranı 1,13 olan AgCu alaşımında soğutma hızına bağlı olarak metal cam oluşumu gözlenir. Bununla birlikte, amorf sistemlerin termodinamik özelliklerinin nasıl kontrol edilebileceği de ilginç bir çalışma konusudur. Sıvı fazda bulunan bir madde, sıcaklık düşürüldüğünde erime sıcaklığında kristalleşemez, ama aşırı soğuk sıvı halini alır.  $T_g$  cam geçişi sıcaklığından daha düşük sıcaklıklarda amorf yapı meydana gelir.

Moleküler dinamik (MD) simülasyonları, metal veya alaşımların yapısal özelliklerin incelenmesinde sıkça kullanılır. MD simülasyon yöntemi, model sistemin yapısal ve termodinamik özelliklerini sıcaklığın, basıncın ve zamanın fonksiyonu olarak

üretebildiği için amorf sistemlerin incelenmesinde güvenle kullanılabilir. Bu yöntemde bir atomik topluluk, sınır problemlerini en aza indirmek amacıyla periyodik sınır şartları kullanarak genellikle kübik bir sistem içerisine yerleştirilir. Atomların her biri, istenilen sıcaklığa uygun ortalama kinetik enerjiyi sağlayan gelişmiş güzel bir hız kazanır. Newton'un hareket kanunlarına göre, her bir atomun üzerine etkiyen kuvvet hesaplanır ve atomların hareketine izin verilir. Atomlar arasındaki kuvvetler, atomik etkileşmeleri tanımlayan potansiyel enerji fonksiyonlarının gradiyentinden belirlenir. Anizotropik sistemlere uygulanabilen Parrinello-Rahman (PR) MD yöntemi, kristal sistemlerin pek çok özelliğini açıklamada başarıyla kullanılmıştır (Parrinello, 1980).

Simülasyon sürecinde atomlar, belirlenmiş bir uzay bölgesinde bulunurlar. Bu şartlara bağlı olarak, moleküler dinamik simülasyon yöntemi kullanılarak herhangi bir element atomlarından oluşan toprakların sıcaklığını, yüksek sıcaklıktan düşük sıcaklığa düşürme işlemleriyle yapısal faz geçişlerini gözlemek mümkündür. Bu faz geçişinin belirlenmesinde kullanılan yöntemlerden, radyal dağılım fonksiyonudur. Radyal dağılım fonksiyonu eğrileri (RDF), kristal yapı bir katının en yakın komşu uzaklıklarında keskin pikler gösterir. Bu keskin pikler, yüzey merkezli kübik (fcc) birim hücreli bir kristal için,  $r_0$  en yakın komşu uzaklığının  $1, \sqrt{2}, \sqrt{3}, \sqrt{4}...$  katlarındaki uzaklıklarda keskin pikler gösterir.

Gömülmüş atom metodu (Embedded atom method -EAM), ilk defa Daw ve Baskes (Daw ve Baskes, 1983) tarafından önerilmiş olup, daha sonra çeşitli araştırmacılar tarafından geliştirilerek bilgisayar simülasyon çalışmalarında verimli bir şekilde kullanılmıştır. Çok cisim potansiyellerinden biri olan gömülmüş atom potansiyeli, fcc yapıli geçiş metalleri olan Ag ve Cu alaşımlarını modellemede başarılı olduğu görülmüştür (Daw ve Baskes, 1984). EAM ile yapılan yaklaşımların geçerliliği, gömme enerjisi terimindeki yük yoğunluğunun tam olarak belirlenmesine bağlıdır. EAM yaklaşımı, katı faz yapılarını incelemek üzere modellenmiştir ve PEF parametrelerinin belirlenmesinde model sistemin katı faz özelliklerinden yararlanır. Bununla birlikte metalik sistemlerin sıvı fazlarına uygulanması son yıllarda hız kazanmıştır (Liu, 2001 - Schafer, 2002). Bu çalışmalardaki temel problem, EAM için tanımlanan katı faz fonksiyonlarının sıvı veya amorf sistemleri için ne kadar geçerli

olacağı ve parametrelerinin nasıl belirleneceğidir (Kuiying, 1995). Çünkü, sıvı durumda elektron yoğunluğu katıya göre daha düşüktür ve en azından gömme fonksiyonu için yapılan yaklaşımlarda bazı değişikliklerin yapılması gerekir.

Qi ve arkadaşları, CuAg sıvı metalinin kristalleşmesini ve cam dönüşümü olayını moleküler dinamik simülasyon yöntemi ile incelemiştir. Farklı soğutma hızları kullanarak, Ag60-Cu40 alaşımının soğutma ve ısıtma işlemlerinden elde edilen sıcaklığa bağlı atomik hacim eğrilerini incelemiştir. Erime sıcaklığını teorik olarak,  $T_m = 1090 \text{ K}$  ve deneysel olarak,  $T_m = 1053 \text{ K}$  bulmuşlardır. SC EAM kullanarak, Ag60-Cu40 sıvı metalinin radyal dağılım eğrileri ve sıcaklık- hacim eğrileri ile faz dönüşümü grafiklerini elde etmişlerdir (Qi ve arkadaşları, 1999).

Qi ve arkadaşları, sabit basınç ve sabit sıcaklık MD yöntemini temel alarak,  $\text{Cu}_{40}\text{Ag}_{60}$  sıvı metalinin cam dönüşüm fazının atomik tanımını elde etmek için moleküler dinamik yöntemini kullanmışlardır. Radyal dağılım fonksiyonu ve çift analiz metodunu kullanarak bu alaşımın cam dönüşüm yeteneğini ve yapısını farklı soğutma hızlarında çalışmışlardır.. Amorf yapının oldukça yüksek soğutma hızları gerektirdiğini gözlemlemişlerdir (Qi ve arkadaşları, 2004).

Feraoun ve arkadaşları çalışmalarında, Sutton-Chen parametrelerini kullanarak çok cisim potansiyelinin analitik yapısını Cu ve Ag için sunmuşlardır. Yeni bir yaklaşım olarak Cu-Ag alaşımları için karşılıklı etkileşmeleri model olarak kullanmışlardır.  $B_2$  ve fcc yapılarındaki düzenli ve düzensiz Cu-Ag alaşımlarının yapısal özelliklerini farklı konsantrasyonlar için sunmuşlardır (Feraoun ve arkadaşları, 2002).

Bu tez çalışmasında, EAM yaklaşımını ve MD simülasyon yöntemi kullanılarak iki atomlu sistemler için soğutma hızına bağlı katılma kinetikleri belirlenmiştir. Katı faz ile sıvı faz arasında yapısal özellik bakımından ilişki kurulmuştur. Sutton-Chen (SC) EAM ile modellenen Ag60-Cu40 atomik yüzdeli alaşımın sıvı fazı elde edilmiş sonra farklı soğutma hızları kullanılarak hızlı katılaştırma yöntemlerine uygun olarak katılaşmaları sağlanmıştır. Bulunan katı fazların, yapısal özellikleri, radyal dağılım fonksiyonları incelenerek çözümlenmiştir. Ayrıca, entalpi, potansiyel enerji ve hacimsel değişim, 0 GPa basınçta, sıcaklığın fonksiyonu olarak incelenmiştir.

## 2. MATERYAL VE METOD

### 2.1. Moleküler Dinamik Simulasyonu ve Gömülmüş Atom Modeli

Simulasyon çalışmasında ilk adım, moleküller arasındaki etkileşmeyi tanımlayan bir potansiyel enerji fonksiyon (PEF) seçimini gerektirir. Metalik sistemleri modellemek için kullanılan iki cisim etkileşme potansiyellerinin kolayca yorumlanabilme ve hızlı hesaplama avantajları yanında, küresel simetrik etkileşmelere uygulanması gibi birtakım sınırlamalar olması, araştırmacıları çok cisim potansiyellerini kullanmaya yöneltmiştir.

Çok cisim potansiyellerinin en büyük avantajı, metalik sistemlerin elastik sabitleri ve kohesif enerjisi gibi temel özelliklerini en iyi şekilde tanımlayabilmesidir. Bu çalışmadaki metalik sistemler, çok cisim potansiyeli olarak bilinen gömülmüş atom yöntemi ile modellenmiştir.

EAM yaklaşımında kristal içindeki bir atomun enerjisi, elektrostatik itici enerjilerinin toplamı ile atomun bulunduğu koordinatlardaki elektronik yük yoğunluğundan kaynaklanan gömme enerjisi terimlerinin toplamı olarak tanımlanır. Elektrostatik itici kuvvetler, maddenin kendi üzerine çökmesini önlerken, uzun mesafeli çekici kuvvetlerde maddenin dağılmasını önler. Bu kuvvetlerin mesafesi ve şiddeti  $n$  ve  $m$  sabitleri ile tanımlanan değerler ile belirlenir. Buna göre,  $N$  atomlu bir kristalin toplam potansiyel enerjisi;

$$E_T = \sum_{i=1}^N \left[ \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \Phi(r_{ij}) + G_i(\bar{\rho}_i) \right] \quad (2.1)$$

olarak verilir. Burada,  $\Phi(r_{ij})$  ikili etkileşme fonksiyonu,  $G_i(\bar{\rho}_i)$  ise  $i$  atomunu  $\bar{\rho}_i$  elektronik yük yoğunluğunun bulunduğu bir örgü noktasına yerleştirmek için gereken ve gömme enerjisi olarak bilinen bir fonksiyon olup, çekici etkileşmeleri temsil eder. Günümüzde gömülmüş atom yönteminin en yaygın kullanılan tipleri Finnis-Sinclair modeli (Finnis ve Sinclair, 1984), Voter-Chen modeli (Voter ve Chen, 1987) ve Sutton-Chen modelleridir (Sutton ve Chen, 1990). Bilgisayar simülasyonlarında ampirik tanımlamalar daha yaygın kullanılmaktadır. Finnis ve

Sinclair tarafından yapılan yarı ampirik bir yaklaşıma göre, sıkı bağ teorisinde, ikinci moment yaklaşımı kullanılarak elde edilen sonuçlar üzerine kurulu gömme enerjisi fonksiyonu;

$$G_i(\bar{\rho}_i) = -c\sqrt{\bar{\rho}_i} \quad (2.2)$$

ile olarak tanımlanır (Finnis ve Sinclair, 1984). Burada  $c$  kristal özelliklerinden elde edilen boyutsuz bir sabittir. Orijinal EAM yaklaşımında, gömme fonksiyonunun argümanı  $\bar{\rho}_i$ ,  $i$  noktasındaki elektronik yük yoğunluğu olarak tanımlanır ve  $i$  atomunu çevreleyen komşu atomların atomik yük yoğunluklarının  $i$  noktasındaki toplamı olarak hesaplanır.

$$\bar{\rho}_i = \sum_{j \neq i} \rho(r_{ij}) \quad (2.3)$$

EAM yaklaşımında iki cisim etkileşmesini temsil eden PEF  $\Phi(r_{ij})$  ve yük yoğunluğu fonksiyonu  $\rho(r_{ij})$  olmak üzere, nükleer koordinatlara bağlı iki fonksiyon tanımlanması gereklidir. Sutton ve Chen modeli ile tanımlanan kristal toplam enerjisi;

$$E_T = \varepsilon \sum_i^N \left[ \frac{1}{2} \sum_{j \neq i}^N \left( \frac{a_0}{r_{ij}} \right)^n - c\sqrt{\bar{\rho}_i} \right] \quad (2.4)$$

$$\bar{\rho}_i = \sum_{j \neq i}^N \left( \frac{a_0}{r_{ij}} \right)^m \quad (2.5)$$

ile olarak ifade edilir (Sutton ve Chen, 1990). Burada,  $\varepsilon$  enerji boyutunda bir parametre,  $a_0$  kristalin örgü sabiti,  $c$  boyutsuz bir sayı,  $n$  ve  $m$  ise birer tam sayıdır. Ag ve Cu için Sutton-Chen potansiyel enerji fonksiyonunun parametre değerleri Çizelge 2.1 de verilmiştir (Qi ve arkadaşları, 1999).



**Çizelge 2.1** Ag ve Cu için Sutton-Chen Formunda kullanılan potansiyel parametrelerinin bazı maddeler için değerleri.

	$\varepsilon$ (meV)	$c$	$m$	$n$	$a_0$ (Å)
Ag	2,5415	144,41	6	12	2,96
Cu	1,2382	39,432	6	9	3,61

EAM yaklaşımında,  $A$  ve  $B$  atomlarından oluşan ikili bir alaşım sistemi için toplam potansiyel enerji ifadesi,

$$E_T = \sum_{i^A} G^A(\bar{\rho}_i) + \frac{1}{2} \sum_{i^A j^B} \Phi^{AA}(r_{ij}) + \frac{1}{2} \sum_{i^A j^B} \Phi^{AB}(r_{ij}) + \sum_{i^B} G^B(\bar{\rho}_i) + \frac{1}{2} \sum_{i^B j^B} \Phi^{BB}(r_{ij}) + \frac{1}{2} \sum_{i^B j^A} \Phi^{BA}(r_{ij}) \quad (2.6)$$

ile verilir (Kuiying, 1996). Burada  $i^A$  ve  $i^B$ , sırasıyla  $A$  ve  $B$  türündeki atomlar üzerinden toplamı ifade eder.

Gömülmüş atom yöntemine göre, tek atomlu bir sistem için tanımlanan gömme enerjisi fonksiyonu ile alaşım sistemlerinde kullanılan gömme fonksiyonu aynı olduğundan, FS yaklaşımında ikili alaşım sistemlerinin  $\rho^{AA}$ ,  $\rho^{BB}$ ,  $\rho^{AB}$  yük yoğunluk fonksiyonları, (2.2) ve (2.5) denklemleri dikkate alınarak

$$\rho^{AA}(r) = \left( \frac{a^{AA}}{r} \right)^{m^{AA}} \quad (2.7a)$$

$$\rho^{BB}(r) = \left( \frac{a^{BB}}{r} \right)^{m^{BB}} \quad (2.7b)$$

$$\rho^{AB}(r) = \left( \frac{a^{AB}}{r} \right)^{m^{AB}} \quad (2.7c)$$

şeklinde, (2.6) denklemindeki  $\Phi^{AA}$ ,  $\Phi^{BB}$ ,  $\Phi^{AB}$  fonksiyonları ise,

$$\Phi^{AA}(r) = \varepsilon^{AA} \left( \frac{a^{AA}}{r} \right)^{n^{AA}} \quad (2.8a)$$

$$\Phi^{BB}(r) = \varepsilon^{BB} \left( \frac{a^{BB}}{r} \right)^{n^{BB}} \quad (2.8b)$$

$$\Phi^{AB}(r) = \varepsilon^{AB} \left( \frac{a^{AB}}{r} \right)^{n^{AB}} \quad (2.8c)$$

olarak tanımlanır (Sutton, 1992). Ayrıca, alaşım sistemlerinde aynı tür atomlar arasındaki etkileşimler, tek atomlu sistemlerdeki ile aynı olduğu için sırasıyla  $\varepsilon^{AA}$ ,  $c^{AA}$ ,  $a^{AA}$ ,  $m^{AA}$  ve  $n^{AA}$  parametreleri bir  $A$  metalinin  $\varepsilon$ ,  $c$ ,  $a$ ,  $m$  ve  $n$  parametrelerine eşit olur. Aynı şekilde  $\varepsilon^{BB}$ ,  $c^{BB}$ ,  $a^{BB}$ ,  $m^{BB}$  ve  $n^{BB}$  parametreleri de saf bir  $B$  elementinin  $\varepsilon$ ,  $c$ ,  $a$ ,  $m$  ve  $n$  parametrelerine eşittir (Sutton, 1992). Farklı tür atomlar arasındaki ikili etkileşimler için de,

$$\Phi^{AB} = \sqrt{\Phi^{AA} \cdot \Phi^{BB}} \quad \text{ve} \quad \rho^{AB} = \sqrt{\rho^{AA} \cdot \rho^{BB}} \quad (2.9)$$

fonksiyonlarını kullanarak  $\varepsilon^{AB}$ ,  $c^{AB}$ ,  $a^{AB}$ ,  $m^{AB}$  ve  $n^{AB}$  parametreleri,

$$\begin{aligned} m^{AB} &= \frac{1}{2}(m^{AA} + m^{BB}) \\ n^{AB} &= \frac{1}{2}(n^{AA} + n^{BB}) \\ a^{AB} &= \sqrt{a^{AA} \cdot a^{BB}} \\ \varepsilon^{AB} &= \sqrt{\varepsilon^{AA} \cdot \varepsilon^{BB}} \end{aligned} \quad (2.10)$$

şeklinde belirlenebilir (Sutton, 1992 – Özgen ve Duruk, 2003).

Ampirik gömme fonksiyonu tanımlama yöntemlerinden biri, (2.1) denklemiyle tanımlanan kristal toplam enerjisini,

$$E_R(a^*) = -E_c(1 + a^*)e^{-a^*} \quad (2.11a)$$

$$a^* = \frac{\frac{a}{a_0 - 1}}{\sqrt{\frac{E_c}{9B_m\Omega}}} \quad (2.11b)$$

ile verilen Rose enerjisini sayısal yöntemlerle uygunlaştırarak kübik bir fonksiyon şeklinde belirlemektir. (2.11) denkleminde,  $E_c$  katının denge kohesif enerjisi,  $a$  örgü sabiti,  $a_0$  denge örgü sabiti ve denge atomik hacmi  $\Omega$  olarak (fcc kristal için  $\Omega = a^3/4$ ) tanımlanır.

### 3. BULGULAR VE TARTIŞMALAR

#### 3.1 CuAg Alaşımının İncelenmesi

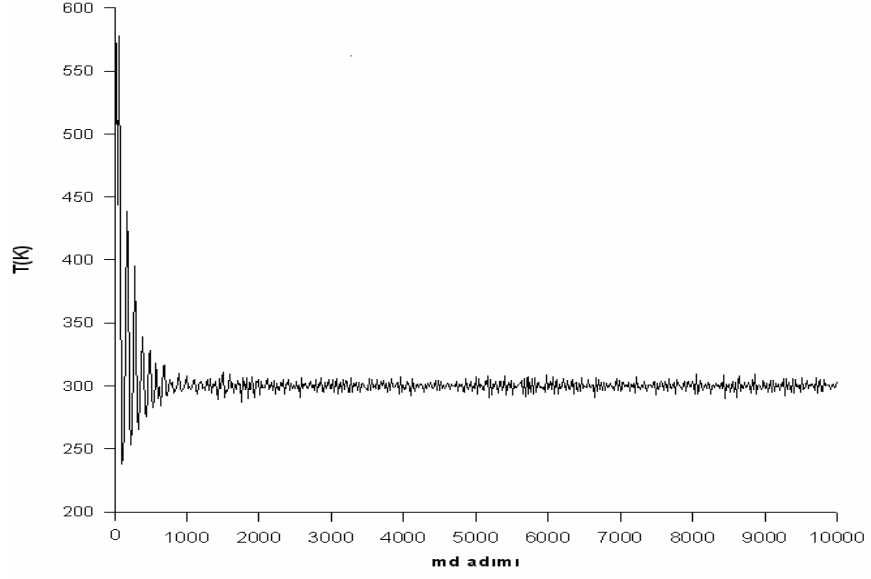
Bu çalışmada, 432 atomlu Ag60-Cu40 sıvı alaşımı için yapılan soğutma işlemlerinde sistem sıcaklıkları, 3 farklı soğutma hızı kullanılarak 1600 K den 200 K e düşürülmüştür. Bu çalışmadaki 1., 2. ve 3. soğutma hızları  $5 \times 10^{11}$  K/s,  $1 \times 10^{12}$  K/s ve  $4 \times 10^{12}$  K/s dir. Bu işlemler sırasında alaşımda meydana gelen yapısal değişimler RDF eğrileri yardımıyla analiz edilmiştir. RDF grafiklerinin tamamında sıcaklığın azalmasıyla birlikte daha düzenli bir yapıya geçiş olduğundan, birinci pikin şiddetinin giderek arttığı görülmüştür.

Yapılan simülasyon çalışmasında 3.soğutma hızı kullanıldığında elde edilen sıcaklık değişimleri Şekil 3.1 de verilmiştir. Bu çalışmada, 3.soğutma hızında sistemin 300 K deki basıncın zamanla değişimi Şekil 3.2 de verilmiştir. Hızlı soğutma şartlarında sistem sıcaklığı 1600 K de tutulmuş ve 200 K' e düşürülmüştür. Birinci soğutma hızı için farklı sıcaklıklarda Ag60-Cu40 alaşımının radyal dağılım fonksiyonu eğrileri Şekil 3.3 de verilmiştir. RDF ilk pik konumu, atomlar arasındaki en yakın komşu uzaklıklarını gösterir ve bu pik şiddeti, bağlı atomların sayısının bir ölçüsü olarak değerlendirilebilir. Sıvı fazda bulunan maddelerde atomik yerleşimler periyodik özellik göstermediği için, 1600 K de sıvı fazda bulunan alaşım RDF de keskin pikler vermez. Buradan, kullanılan EAM yaklaşımının sıvı fazı gerçeğe yakın temsil ettiği sonucunu çıkarabiliriz. Sıcaklığın azalmasıyla birlikte birinci pikin şiddetinin giderek artması, soğutma işlemi boyunca düzen derecesinin artarken düzensizlik derecesinin giderek azaldığını gösterir. Bilindiği gibi sıvı metal, mikro yapısal çeşitliliğe sahiptir ve katılarda bulunmayan çok düzensiz yapısal birimler içerir. Dolayısıyla, birinci pikteki bu değişimde, sıvı içerisinde bulunan ve düzensiz yapıyı oluşturan atomik kümelerin sayısında sıcaklığın azalmasıyla birlikte bir artış olduğu ve amorf katı içinde de kısa mesafe düzenine sahip atomik kümeler bulunduğu sonucu çıkartılabilir. Şekil 3.3' ün her sıcaklık için topluca incelenmesi sonucunda, maddenin katılaşma sürecinde en yakın komşu koordinasyon sayısının azalan sıcaklıkla birlikte arttığı görülür. Bu artış, kristal büyümesi için düzensiz bir değişime sahiptir ve kristalin yapısal özelliklerine bağlı olarak birinci, ikinci,..yakın

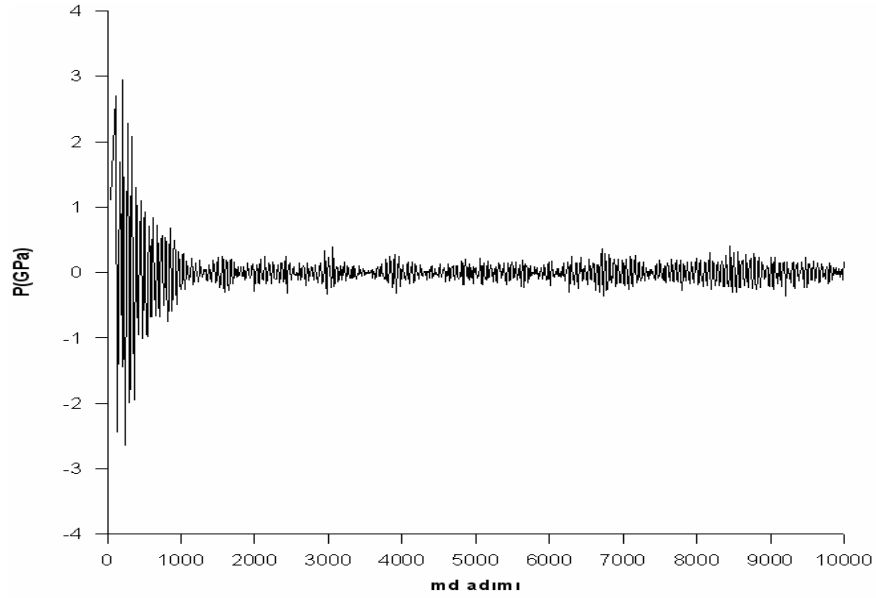
komşu uzaklıklarında piklerin oluşmaya başladığı görülmektedir. Sıcaklık, 1000 K' den 950 K' e düşürüldüğünde kristalleşme gerçekleştiği görülür.

İkinci hızlı soğutma işlemi sırasında, yaklaşık 500 K civarında ikinci pikin yavaş şekilde yarıldığı görülür. İkinci pikteki bu yarılmanın metalik bir camın RDF deki karakteristik bir özelliği olduğu çok iyi bilindiğinden, Ag60-Cu40 alaşımının  $1 \times 10^{12}$  K/s soğutma hızında amorf katıya dönüştüğü söylenebilir. Buradan da, EAM tipi potansiyeller kullanılarak ikili alaşım sistemlerinde cam halinin iyi bir şekilde üretildiği sonucu çıkmaktadır. 2. soğutma hızında, birinci ve ikinci pikler arasında sıcaklığın düşmesiyle kendini gösteren ve yapının değiştiğine işaret eden küçük bir pik vardır. 200 K sıcaklığında belirginleşen bu pik, *sırt piki* olarak bilinir. Ag60-Cu40 için daha düşük soğutma hızlarında 200 K de birinci pikin yüksekliğinin arttığı gözlenir. Birinci pikteki bu artış daha güçlü bir kimyasal kısa mesafe düzeni oluşturduğu anlamına gelerek kristal yapıya işaret eder. Yavaş soğutma işlemleri sırasında kristalin oluşumu sürecinde, sıcaklığın düşmeye başlamasıyla beraber sistem periyodik bir yapıya doğru sürüklenir ve aşırı soğuk sıvı yapı içerisinde herhangi bir katı fazın kümelenmesi olarak değerlendirilen bir katılaşma girişimi olur. Fakat sistemin minimum enerjili yapılandırmaya yerleşememesi nedeniyle bu yapılaşma bozulur ve sistem tekrar sıvı forma döner. Bununla birlikte, sıcaklığın düşmeye devam etmesi sonucunda aşırı soğuk sıvı içerisinde kararlı fcc kümeleri oluşur ve bu kümeler büyüyerek kristali oluşturur. Ama kristaldeki bazı düzensiz yapılardan dolayı standart bir fcc kristali ile arasında küçük farklar bulunabilir. Soğutma hızının birinci pikin şiddeti üzerinde etkisini göz önünde bulundurarak oluşan fcc kristalinin ikinci soğutma hızı sonucu oluşan arasındaki fark gözlemlenebilir (Özgen ve Duruk, 2004). İkinci soğutma hızı için farklı sıcaklıklarda Ag60-Cu40 alaşımının radyal dağılım fonksiyonu eğrileri Şekil 3.4 de verilmiştir. Bu şekilde, 500 K civarında ikinci pikin yavaş şekilde yarıldığı görülür. İkinci pikteki bu yarılmanın metalik bir camın RDF deki karakteristik bir özelliği olduğu çok iyi bilindiğinden, Ag60-Cu40 alaşımının amorf katıya dönüştüğü söylenebilir. Üçüncü soğutma hızı için farklı sıcaklıklarda Ag60-Cu40 alaşımının radyal dağılım fonksiyonu eğrileri Şekil 3.5 de verilmiştir. İkinci soğutma hızındaki ısı işlem sürecine benzer olarak amorf yapıya dönüşüm gözlenmiştir.

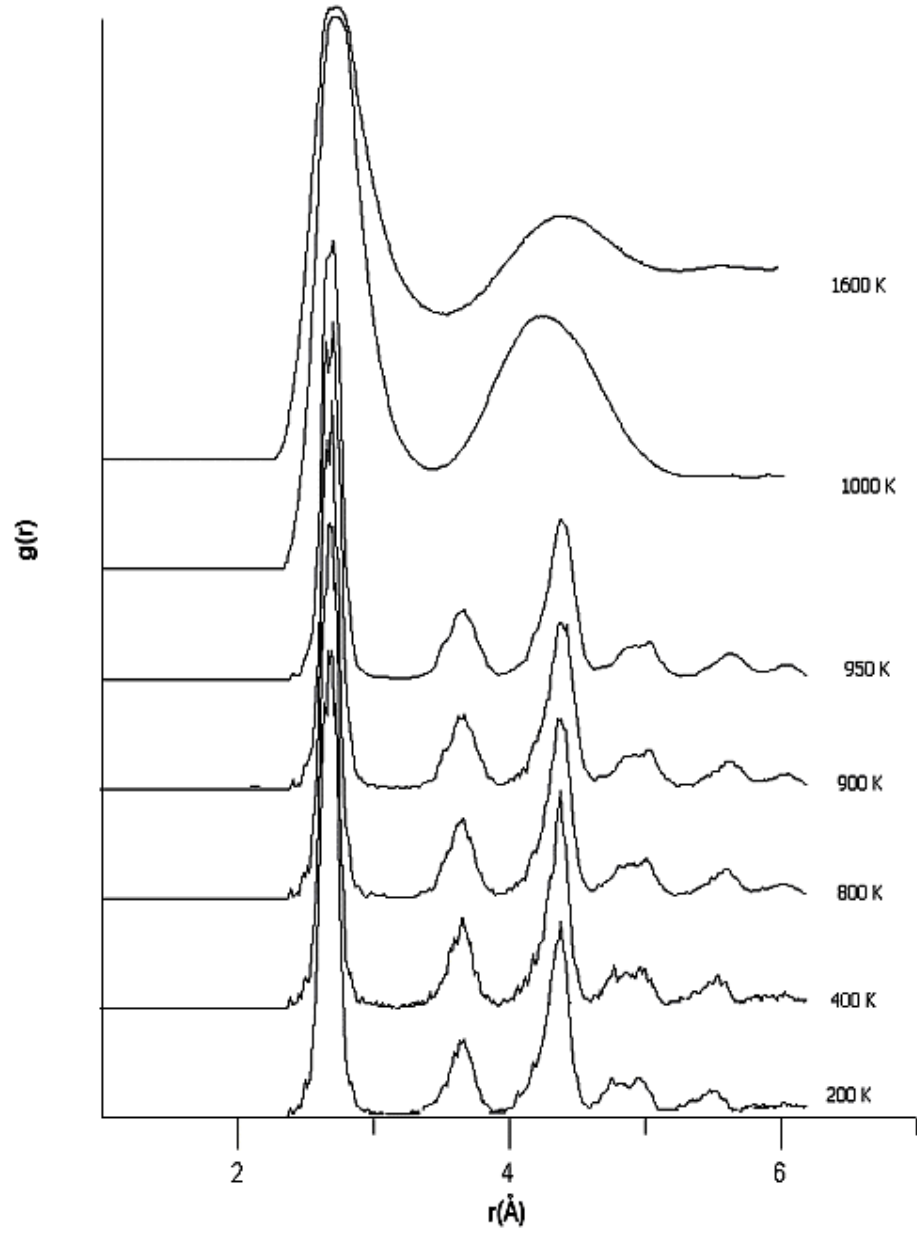
Ag60-Cu40 alařımı için  $4 \times 10^{12}$  K/s sođutma hızında sıcaklıđa karřı potansiyel enerji, entalpi ve hacim eđrileri, sırasıyla, Őekil 3.6 ve Őekil 3.7 ve Őekil 3.8 de verilmiřtir. Sıcaklıđın azalmasıyla kırılmalar meydana gelmiřtir. Kırılmaya neden olan bu ani deđiřim faz geçiři olduđunu gsterir. Sıcaklıđa bađlı atomik hacim deđiřim eđrilerindeki kırılma, sođutma hızlarına bađlıdır. Yksek sođutma hızlarında kırılmaya neden olan bu ani deđiřim faz geçiři olduđunu gsterir Ag60-Cu40 alařımının sođutma iřlemlerinden elde edilen sıcaklıđa bađlı atomik hacim eđrileri,  $5 \times 10^{11}$  K/s,  $1 \times 10^{12}$  K/s ve  $4 \times 10^{12}$  K/s iin Őekil 3.9 da topluca verilmiřtir.  $5 \times 10^{11}$  K/s sođutma hızında alařımın kristalleřtiđi,  $1 \times 10^{12}$  K/s ve  $4 \times 10^{12}$  K/s sođutma hızında ise alařımın amorf yapıya dnřtđ grlmřtir. Yavaş sođutma hızlarında atomların kristalleřme oluřturmak iin kristalin rg noktalarına hareket edecek kadar yeterli zamana sahip olması, katı yapının kristalleřmesini sađlar. Bunun yanı sıra, hızlı sođutma iřleminde kristalleřme engellendiđinden, atomik koordinatların takip edilmesi potansiyel enerji-sıcaklık, entalpi-sıcaklık, hacim-sıcaklık eđrilerindeki deđiřimin gzlenmesi ve radyal dađılım eđrilerinin incelenmesi ile amorf yapıya geiř gzlenmektedir.



**Şekil 3.1** Ag60-Cu40 alaşımının  $4 \times 10^{12}$  K/s ısıtma hızında (300 K sıcaklığında) sıcaklık-zaman eğrisi.

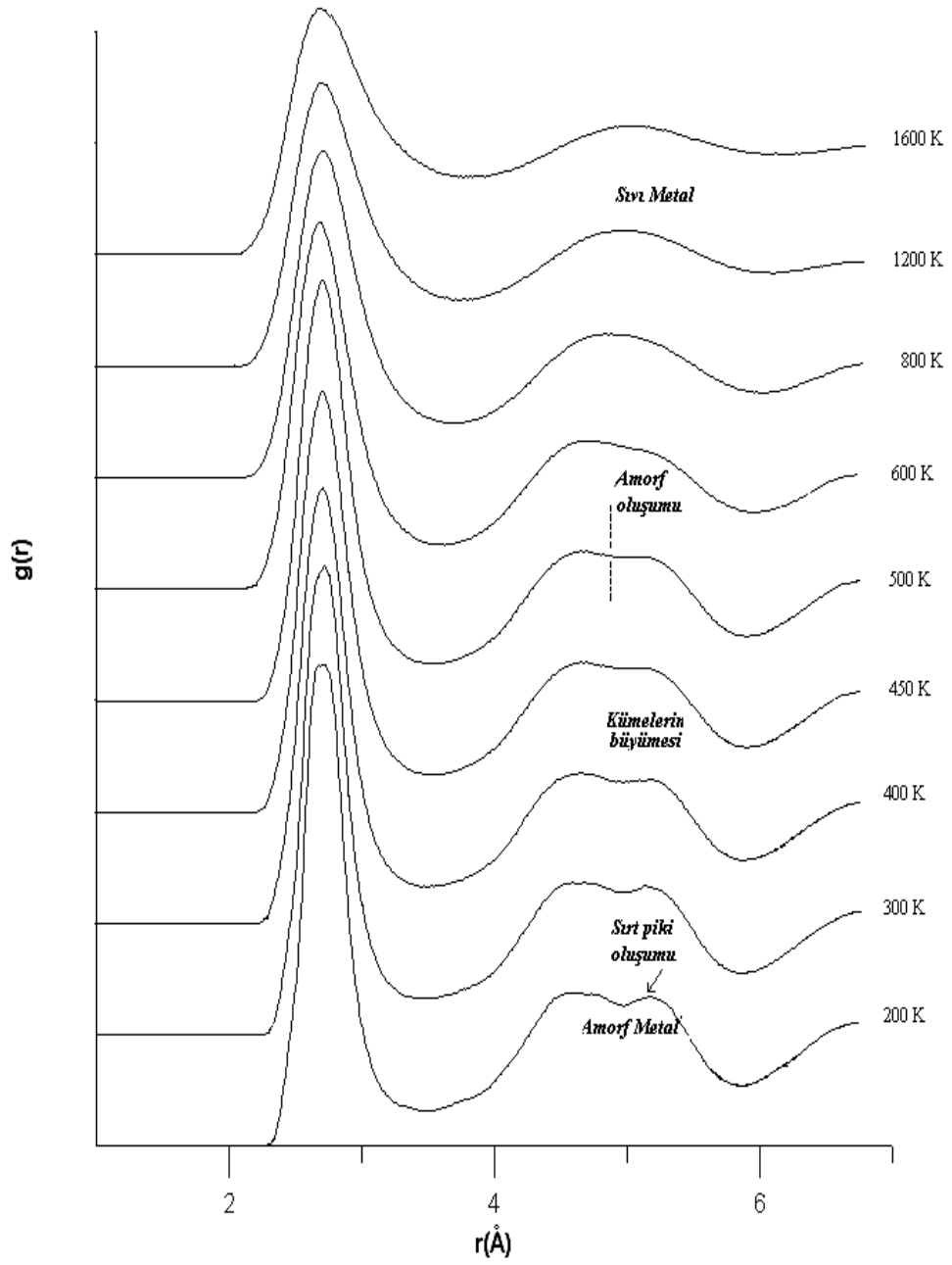


**Şekil 3.2** Ag60-Cu40 alaşımının  $4 \times 10^{12}$  K/s ısıtma hızında (300 K sıcaklığında) basınç-zaman eğrisi.

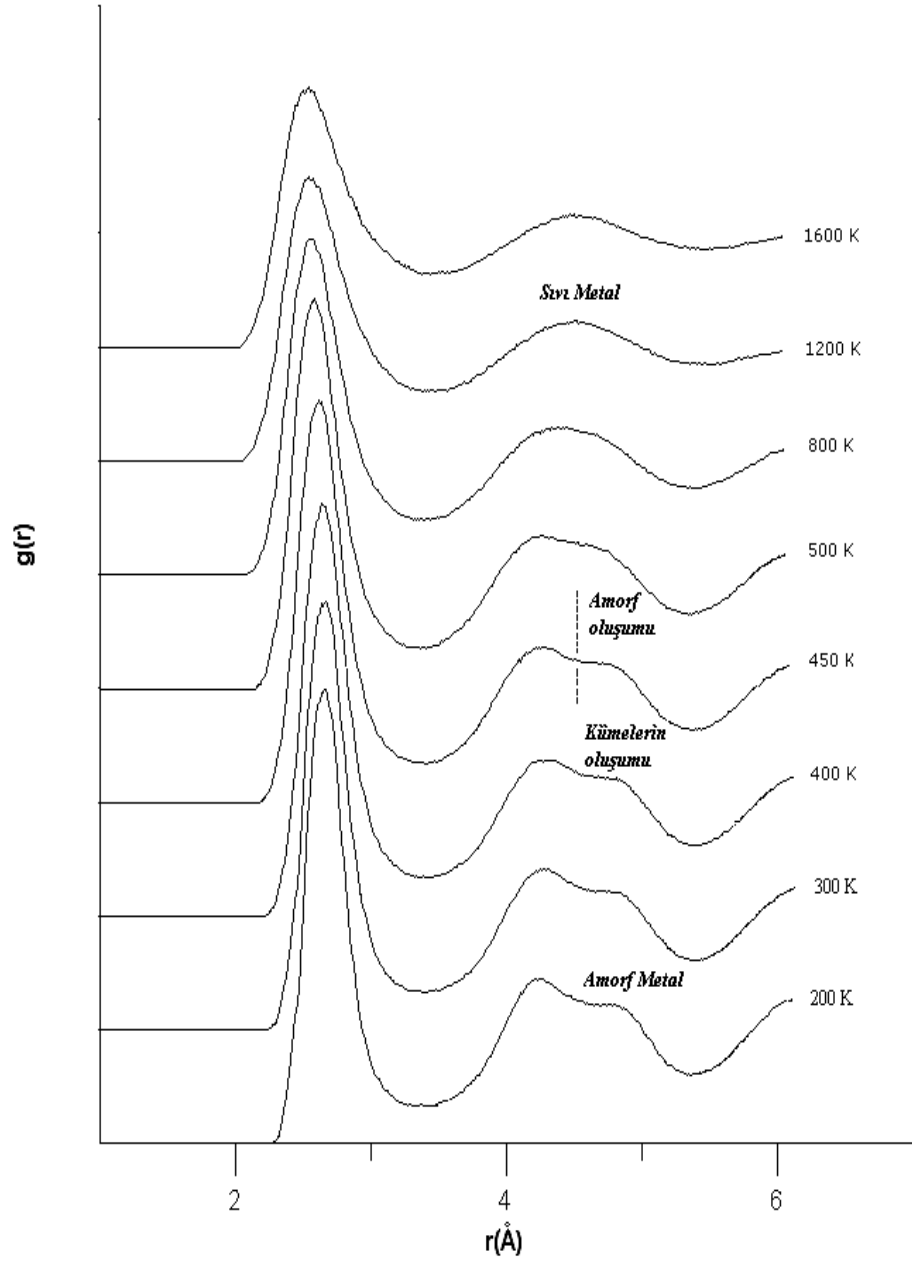


**Şekil 3.3** Birinci soğutma hızı ( $5 \times 10^{11}$  K/s) için farklı sıcaklıklarda Ag<sub>60</sub>-Cu<sub>40</sub> alaşımının radyal dağılım fonksiyonu  $g(r)$  eğrileri.

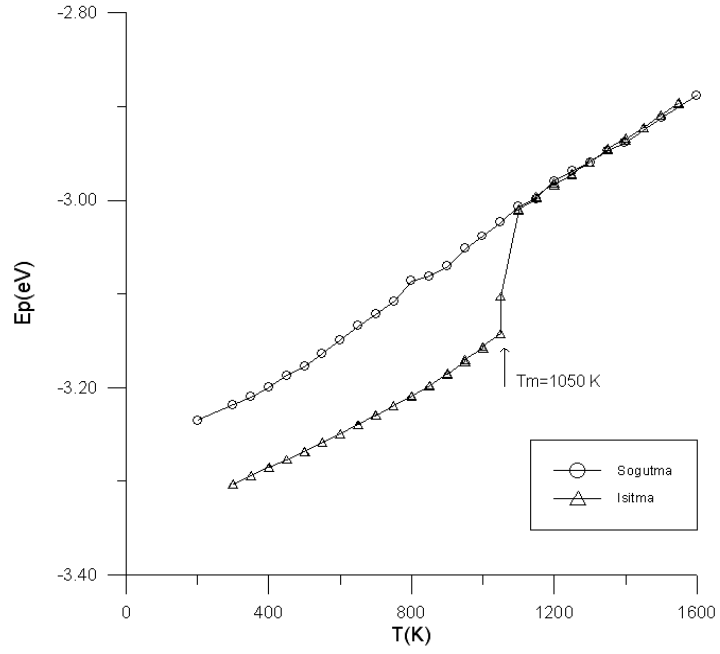




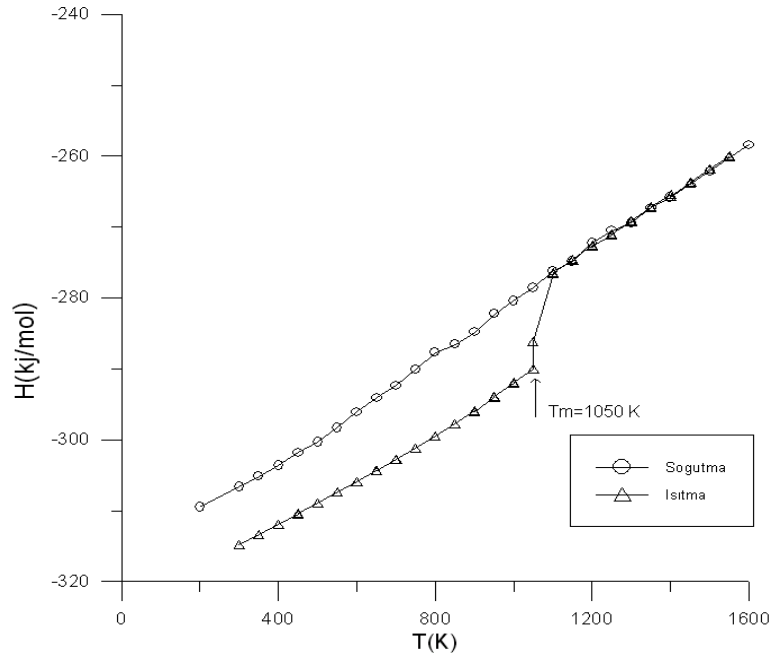
**Şekil 3.4** İkinci soğutma hızı ( $1 \times 10^{12}$  K/s) için farklı sıcaklıklarda Ag<sub>60</sub>-Cu<sub>40</sub> alaşımının radyal dağılım fonksiyonu  $g(r)$  eğrileri.



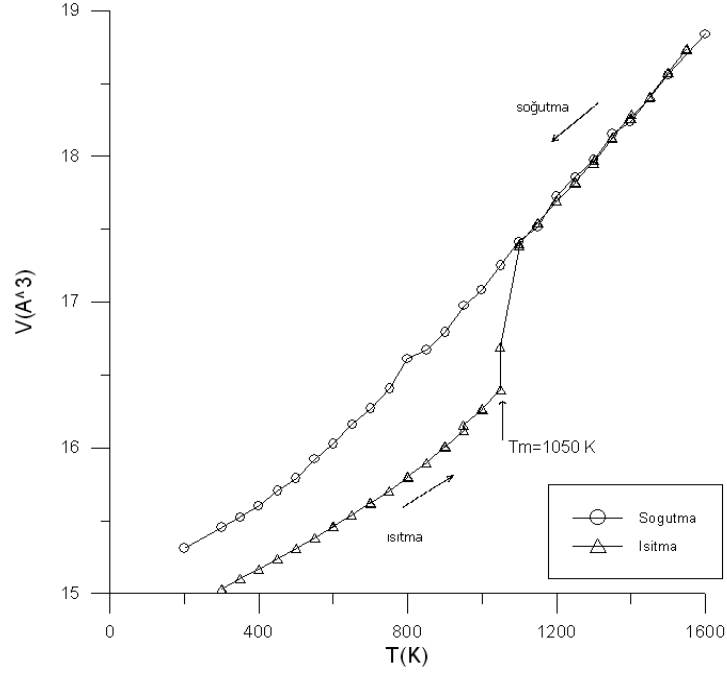
**Şekil 3.5** Üçüncü soğutma hızı için ( $4 \times 10^{12}$  K/s) farklı sıcaklıklarda Ag<sub>60</sub>-Cu<sub>40</sub> alaşımının radyal dağılım fonksiyonu  $g(r)$  eğrileri.



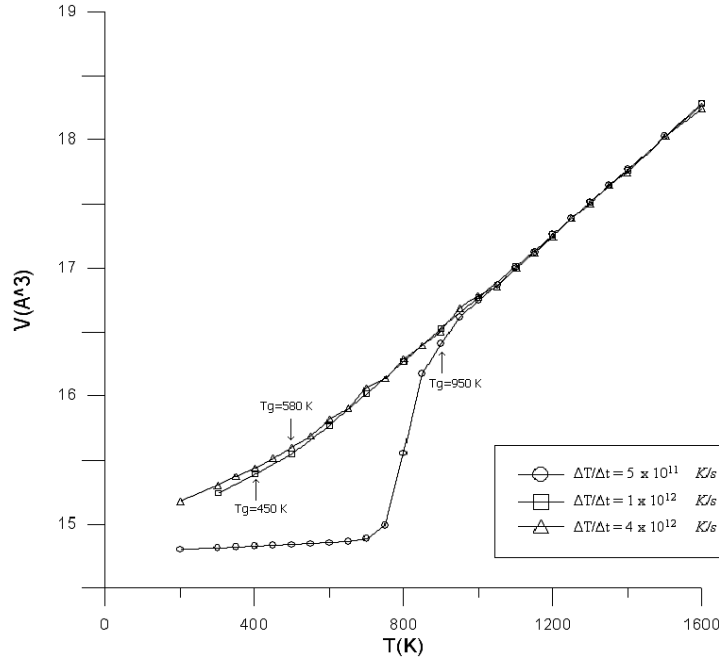
**Şekil 3.6** Ag60-Cu40 alaşımının ısıtma- soğutma işleminden ( $4 \times 10^{12}$  K/s) elde edilen sıcaklığa bağlı atom başına potansiyel enerji eğrileri.



**Şekil 3.7** Ag60-Cu40 alaşımının ısıtma-soğutma işleminden ( $4 \times 10^{12}$  K/s) elde edilen sıcaklığa bağlı entalpi eğrileri.



**Şekil 3.8** Ag60-Cu40 alaşımının ısıtma-soğutma ( $4 \times 10^{12}$  K/s) işleminden elde edilen sıcaklığa bağlı atomik hacim eğrileri.



**Şekil 3.9** Ag60-Cu40 alaşımının soğutma işlemlerinden elde edilen sıcaklığa bağlı atomik hacim eğrileri.

#### 4. SONUÇLAR

Yapılan simülasyon çalışmasında, SC tipi EAM yaklaşımının sıvı, aşırı soğuk sıvı, amorf ve kristal yapıyı ikili alaşım sistemlerinde üretebildiği ve cam geçişi sürecini tanımlayabildiği görülmüştür.

Ag60-Cu40 alaşımında 2. ve 3. soğutma hızları (hızlı soğutma) kullanıldığında amorf yapıya geçiş olduğu, birinci soğutma hızı (yavaş soğutma) kullanıldığında ise kristalleşme meydana geldiği görülmüştür.

Ag60-Cu40 alaşımı üzerine yapılan hızlı soğutma simülasyonlarında, sıcaklığın 2. ve 3. soğutma hızları ile azaltılması sonucu, sistem periyodik bir yapıya sürüklenmiştir. Buradaki atomlar kristalin örgü noktalarına yerleşemediğinden, kompleks bir yapı oluşturarak katılmışlardır. 2. ve 3. soğutma hızlarının kristal oluşumunu engellediği görülmüştür. İçerisinde amorf yapıyı temsil eden atomik kümelerin az sayıda bulunduğu düzensizlik derecesi fazla olan amorf katılar oluştuğu görülmüştür.

## 5. KAYNAKLAR

Cong, H.R., Bian, X.F., Zhang, J.X., Li, Hui., 2002. Structure properties of Cu-Ni alloys at the rapid cooling rate using embedded-atom method, *Mater. Sci. Engine. A*, 326, 343-347.

Çakmak, S., Ertunc, E., Kara, İ., Çakmaktepe, Ş., 2005. Gömülmüş atom potansiyeli kullanarak Nikelin moleküler dinamik simülasyonu, *S.D.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*, 9, 2.

Daw, M.S., Baskes, M.I., 1983. Semiempirical quantum mechanical calculation of hydrogen embrittlement in metals, *Phys. Rev.*, 50, No.17, 1285-1288.

Daw, M.S., Baskes, M.I., 1984. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces another defects in metals, *Phys. Rev. B*, 29, No12, 6443-6453.

Duruk, E., 2004. Amorf alaşımlarda kümeli yapıların moleküler dinamik benzetimi ile incelenmesi, *Y.Lisans Tezi, Fırat Üniversitesi*, s36, Elazığ

Feraoun, H., 2002. A new form of the Sutton-Chen potential for the Cu-Ag alloys, *Superlattices and Microstructures*, 31, No.6, 297-311.

Finnis, M.W., Sinclair, J.E., 1984. A simple empirical N-body potential for transition metals, *Philosophical Magazine A*, 50, No.1, 45-55.

Kazanç, S., Özgen, S., 2005. Pressure effect on phonon frequency in some transition metals: A molecular dynamics study, *Physica B, Condensed Matter*, 365, No. 1-4, 185-192.

Kazanç, S., Çiftçi, Y.Ö., Çolakoğlu, K., Özgen, S., 2006. Temperature and pressure depece of the some elastic and lattice dynamical properties of copper: A molecular dynamics study, *Physica B, Condensed Matter*, 381, No. 1-2, 96-102.

Kuiying, C., Hongbo, L., Xiaoping, L., Qiyong, H., Zhuangqi, H., 1995. Molecular dynamics simulation of local structure of aluminium and copper in supercooled liquid and solid state by using EAM, *J. Physics: Condens. Matter*, 7, 2379-2394.

Kuiying, C., Xianwei, S., Xiumu, Z., Yiyi, L., 1996. Rapid solidification of Cu-25at%Ni alloy: molecular dynamics simulations using embedded atom method, *Matter. Sci. And Engine. A*, 214, 139-145.

Liu, C.S., Zhu, G., Xia, J., Sun, D.Y., 2001. Cooling rate dependence of structural properties of aluminium during rapid solidification, *J. Phys.: Condens. Matter*, 13, 1873-1890.

Morigaki, K., 1999. *Physics of amorphous semiconductors*, Imperial College Press and World Scientific, Japan.

- Özgen, S., Duruk, E., 2003. Molecular dynamics simulation of diffusionless phase transformation in quenched NiAl alloy model, *J. Physics and Chemistry of Solids*, 64, No.3, 459-464
- Özgen, S., Adıgüzel, O., 2004. Investigation of the thermoelastic phase transformation in NiAl alloy by molecular dynamics simulation, *J. Physics and Chemistry of Solids*, 65, No.5, 861-865
- Özgen, S., Duruk, E., 2004. Molecular dynamics simulation of solidification kinetics of aluminium using Sutton-Chen version of EAM, *Materials Letters*, 58, No. 6, 1071-1075
- Parinello, M., Rahman, A., 1980. Crystal structure and pair potentials: A molecular dynamics study, *Phys. Rev. Lett.*, 45, No.11, 1196-1199.
- Qi, Y., Çağın, T., Kimura, Y., Goddard, W.A., 1999. Molecular-dynamics simulation of glass formation and crystallization in binary liquid metals: Cu-Ag and Cu-Ni, *Phys. Rev. B*, 59, No.5, 3527-3533.
- Qi, L., Zhang, H.F., Hu, Z. Q., 2004. Molecular dynamic simulation of glass formation in binary liquid metal: Cu-Ag using EAM, *Intermetallics*, 12, No.10-11, 1191-1195.
- Schafer, C., Urbassek, H.M., Zhigilei, L.V., Garrison, B.J., 2002. Pressure-transmitting boundary conditions for molecular-dynamics simulations, *Computational Materials Science*, 24, 421-429.
- Sutton, A.P., Chen, J., 1990. Long-range Finnis-Sinclair potentials, *Philos. Mag. Lett.*, 61, 139-146.
- Sutton, A.P., Pethica, J.B., Rafaii-Tabar, H., Nieminen, J.A., 1992. Mechanical properties of metals at the nanometer scale in *Electron theory in alloy design*, Ed. Pettifor D.G. and Cottrell A.H., Institute of materials, The Alden Press Ltd., Oxford, 191-233.
- Voter, A.F., Chen, S.P., 1987. Accurate interatomic potentials for Ni, Al and Ni<sub>3</sub>Al, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Eds.: Siegel, R.W., Weertman, J.R., and Sinclair R., MRS, 82, 175-180.

## 6. ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı : Burcu BOZKURT ÇIRAK

Doğum Yeri : Bolvadin/AFYON

Doğum Yılı : 1980

Medeni Hali : Evli

Eğitim ve Akademik Durumu:

Lise 1995 – 1998 Bolvadin Süper Lisesi

Lisans 1999 – 2003 Süleyman DEMİREL Üniversitesi Fen-Ed. Fakültesi Fizik Bölümü

Yabancı Dil : İngilizce