

## Ta 间隙固溶体中的耦合弛豫\*

林国淙, 刘 晖, 丁喜冬, 张进修  
(中山大学光电材料与技术国家重点实验室//  
物理科学与工程技术学院, 广东 广州 510275)

**摘 要:** 以广义 Arrhenius 方程对不同氧的原子个数百分比  $[N(O)]$  和不同氮的原子个数百分比  $[N(N)]$  的 Ta 间隙固溶体的内耗数据进行曲线拟合, 并对结果进行了讨论。预设不同的  $T_0$  代替  $T_c$ , 得到标准差 SD 最小值时的自发有序温度  $T_c$ 、指数前因子  $\tau_0$  和表观激活自由能  $\Delta G$ ; 对低弛豫元浓度的情况, 由  $T_0 - \Delta G$  数据 ( $T_0$  是  $T_c$  附近的温度) 线性拟合的截距得到激活焓  $\Delta H$ , 由此计算熵的变化  $\Delta S$  和参数  $\tau_0$ 。结果显示: ①自发有序温度  $T_c$  与  $N(O)$  及  $N(N)$  基本上成正比的关系, 显示随着  $N(O)$  或  $N(N)$  的增加, 氧原子之间或氮原子之间的耦合增加, 使自发有序温度  $T_c$  上升; ②随着  $N(O)$  或  $N(N)$  的增加, 组态熵的贡献  $T_c \Delta S$  增大, 表观激活自由能  $\Delta G$  下降; ③参数  $\tau_0$  基本不随  $N(O)$  变化, 这一结果与“不同含氧量具有同一个激活焓  $\Delta H$ ”这一条件是自洽的, 说明了在讨论的  $N(O)$  范围弛豫元是相同的, 是耦合的单个弛豫元; ④  $N(N)$  小于 1.0% 时, 弛豫元是耦合的单个弛豫元;  $N(N)$  较大时, 弛豫元发生变化, 可能出现弱耦合的弛豫元对等, 使  $\Delta S$  增大。

**关键词:** Arrhenius 关系; 内耗; 耦合弛豫; 激活焓

**中图分类号:** TG113.22<sup>+</sup>6 **文献标志码:** A **文章编号:** 0529-6579 (2013) 01-0001-06

## Coupling Relaxation in Interstitial Solid Solution of Tantalum

LIN Guocong, LIU Hui, DING Xidong, ZHANG Jinxiu

(State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies//

School of Physics and Engineering, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275, China)

**Abstract:** In this paper, for the internal friction data of tantalum with oxygen or nitrogen, curve fitting was made by using generalized Arrhenius relation, and the results were discussed. To obtain a self-induced ordering temperature  $T_c$ , curve fitting was made with  $T_c$  replaced with  $T_0$  in generalized Arrhenius relation. Self-induced ordering temperature  $T_c$ , pre-exponential  $\tau_0$  and apparent activation free energy  $\Delta G$  were calculated basing on the criteria of the minimum of the standard difference (SD) of curve fitting. For the situation with low concentration of relaxation unit,  $\Delta H$  is the interception of plot of  $T_0 - \Delta G$ , where  $T_0$  is nearby the  $T_c$ . Then entropy change  $\Delta S$  and factor  $\tau_0$  can be calculated. The results are those as following: (1)  $T_c$  is proportionate to the concentration of oxygen or nitrogen. This indicate that the the increase of oxygen or nitrogen in tantalum makes the coupling between oxygen or nitrogen increases, then makes  $T_c$  increase. (2) With the increase of oxygen or nitrogen in tantalum,  $T_c \Delta S$ , which is the contribution of combination entropy, increases, then makes the apparent activation free energy  $\Delta G$  decrease. (3) Factor  $\tau_0$  is almost a constant for tantalum with oxygen. The result is self-consistent with the condition that there is a same activation enthalpy  $\Delta H$  in it. These indicate that in the concentration range of oxygen in this paper, the relaxation unit is the same individual coupling unit. (4) For the situa-

\* 收稿日期: 2012-08-15

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (50871126); 广东省 - 教育部产学研合作专项资金资助项目 (2010B090400123, 2011B090400376)

作者简介: 林国淙 (1965 年生), 男, 副教授; E-mail: stslgc@mail.sysu.edu.cn

tion of nitrogen concentration less than 1.0%, the relaxation unit is the same individual coupling unit. The relaxation unit changes when the concentration of nitrogen increases more. There may be some relaxation unit pairs with weak coupling in it, which make  $\Delta S$  increase.

**Key words:** arrhenius relation; internal friction; coupling relaxation; activation enthalpy

弛豫是在外力的作用下系统从一个平衡态过渡到另外一个平衡态时经历的过程,是自然界中普遍存在的现象。内耗和力学谱是研究弛豫过程的重要手段<sup>[1-5]</sup>。

弛豫过程是一个热激活过程,必须克服高度为  $\Delta H$  的能垒 ( $\Delta H$  又被称为激活焓,一般不随温度变化),弛豫时间  $\tau$  随温度  $T$  的变化满足以下关系

$$\tau = \tau_0 \exp(\Delta E/kT) \quad (1)$$

这就是 Arrhenius 方程,其中  $k$  为玻尔兹曼常数,  $\tau_0$  称为指数前因子。这原来是一个经验方程, Zener 等人从热力学的基本原理出发,得到了弛豫过程的 Arrhenius 方程<sup>[6-7]</sup>,使之成为理论公式。Arrhenius 方程一直得到广泛应用。

近几十年来,科学家们发现弛豫时间  $\tau$  随温度  $T$  的变化满足非 Arrhenius 关系的实验现象越来越多,较大浓度下点缺陷的弛豫就是其中的一种非 Arrhenius 现象。

人们尝试各种方程来描述非 Arrhenius 现象,较多使用的是描述高聚物玻璃化弛豫的 VFT 经验方程 (Vogel-Fulcher-Tamman 方程<sup>[8]</sup>), 它以一个约化温度 ( $T - T_0$ ) 代替了 Arrhenius 方程的温度  $T$ , 得到

$$\tau = A \exp[B/k(T - T_0)] \quad (2)$$

其中  $T_0$  为参考温度,表示弛豫过程被“冻结”的温度。因为根据 (2) 式,当温度  $T$  趋近  $T_0$  时,弛豫时间  $\tau$  趋于无穷大,弛豫过程被冻结。

非 Arrhenius 现象虽然多种多样,但弛豫元之间的互相耦合或关联 (coupling 或 correlation) 都起了重要作用<sup>[9-10]</sup>,因此,组态熵在弛豫过程中起到重要作用。陈岚<sup>[11]</sup>从滞弹性理论出发,对弛豫元之间存在耦合的情况进行讨论,得到广义 Arrhenius 方程

$$\tau = \tau_0 \exp \frac{\Delta G}{k(T - T_c)} = \tau_0 \exp \frac{\Delta H - T_c \Delta S}{k(T - T_c)} \quad (3)$$

其中  $T_c$ 、 $\Delta G$ 、 $\Delta H$  和  $\Delta S$  分别为弛豫过程的自发有序温度、表观激活自由能、激活焓和熵的变化量。

(3) 式中指数前因子  $\tau_0$  满足以下关系

$$\tau_0 = \tau'_0 \exp\left(\frac{-\Delta S}{kT}\right) \quad (4)$$

指数前因子  $\tau_0$  包含了熵的贡献,  $\tau'_0$  才是反映弛豫

元本身性质的物理量。

(3) 式中激活焓  $\Delta H$  与弛豫元本身的性质有关,弛豫元的耦合影响组态熵  $\Delta S$ ,从而会影响表观激活自由能  $\Delta G$ 。当温度  $T$  趋近  $T_c$  时,弛豫时间  $\tau$  趋于无穷大,弛豫过程被冻结,故  $T_c$  符合自发有序温度或冻结温度的定义。自发有序温度  $T_c$  与弛豫元之间的耦合有关,耦合越强,  $T_c$  越高,  $T_c \Delta S$  对表观激活自由能  $\Delta G$  的影响越大;对于低弛豫元浓度的材料,弛豫元间的耦合可以忽略,虽然熵变  $\Delta S$  不为零,但  $T_c = 0$ ,使  $T_c \Delta S = 0$ ,对表观激活自由能  $\Delta G$  的影响为 0,广义 Arrhenius 方程 (3) 式还原为 Arrhenius 方程 (1) 式。

对  $\ln \tau - T$  实验数据作图,预设不同的  $T_0$  代替  $T_c$ ,以广义 Arrhenius 方程进行曲线拟合,拟合参数为  $\ln \tau_0$  和  $\Delta G/k$ ,得到不同的标准差 SD;在标准差 SD 最小值附近,把自发有序温度  $T_c$  也作为拟合参数,得到标准差 SD 最小值时的自发有序温度  $T_c$ 、指数前因子  $\tau_0$  和表观激活自由能  $\Delta G$ ;如果标准差 SD 没有最小值,则自发有序温度  $T_c = 0$ ,广义 Arrhenius 方程 (3) 式还原为 Arrhenius 方程 (1) 式,拟合可以得到指数前因子  $\tau_0$  和表观激活自由能  $\Delta G =$  激活焓  $\Delta H$ 。

以  $T_c$  附近的温度  $T_0$  代替  $T_c$  代入公式 (3),得到不同的  $\Delta G$ ,由公式 (3) 看出,对  $T_0 - \Delta G$  数据作图,线性拟合的截距为激活焓  $\Delta H$ ,斜率的负值为熵的变化  $\Delta S$ ;该方法对  $T_c$  附近标准差 SD 急剧变化的高弛豫元浓度材料不适用,因为这时  $T_c$  附近的标准差 SD 偏大,得到的  $\Delta G$  已经不可靠,但由于激活焓  $\Delta H$  与弛豫元本身的性质有关,可以取低弛豫元浓度的激活焓  $\Delta H$  来代表高弛豫元浓度的激活焓  $\Delta H$ ,利用拟合得到的表观激活自由能  $\Delta G$  和自发有序温度  $T_c$  计算组态熵的贡献  $T_c \Delta S$  和熵的变化  $\Delta S$ 。

另外,由指数前因子  $\tau_0$ 、熵的变化  $\Delta S$  和公式 (4) 可以计算参数  $\tau'_0$ ,一个反映弛豫元本身性质的物理量。

综上所述,由实验数据和广义 Arrhenius 方程可以得到  $\tau_0$ 、 $T_c$ 、 $\Delta G$ 、 $\Delta H$ 、 $\Delta S$  和  $\tau'_0$ 。

## 1 数据处理

数据来自文献 [12-13] 中不同氧的质量分

数和不同氮的质量分数的 Ta 间隙固溶体的内耗实验结果。曲线扫描后由原文图上的坐标获得不同氧的质量分数和不同氮的质量分数的 Ta 间隙固溶体的温度  $T$  和归一化内耗  $Q/Q_{\max}^{-1}$  数据, 分别如图 1、图 2 所示。

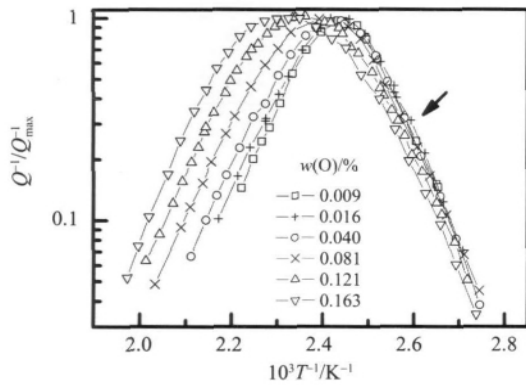


图 1 不同氧的质量分数 Ta-O 的内耗曲线 (振动频率为 0.6 Hz, 数据来自参考文献 [12])  
 Fig. 1 Internal friction curves of tantalum with different concentration of oxygen (Vibration frequency = 0.6 Hz, data from ref. [12])

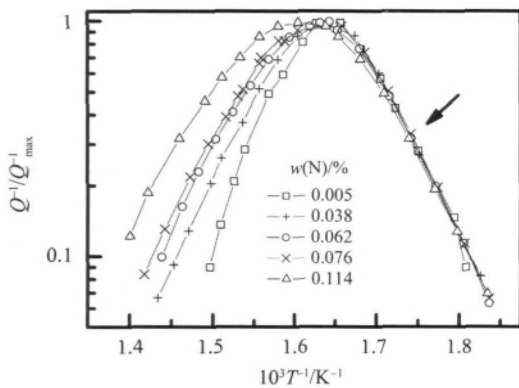


图 2 不同氮的质量分数 Ta-N 的内耗曲线 (振动频率为 0.6 Hz, 数据来自参考文献 [13])  
 Fig. 2 Internal friction curves of tantalum with different concentration of nitrogen (Vibration frequency = 0.6 Hz, data from ref. [13])

由图 1 的不同氧的质量分数的温度  $T$  和归一化内耗  $Q/Q_{\max}^{-1}$  数据, 然后通过公式<sup>[14]</sup>

$$\tau(T) = \frac{1}{\omega} \left[ \frac{Q_{\max}^{-1} T_{\max}}{Q^{-1} T} \pm \sqrt{\left( \frac{Q_{\max}^{-1} T_{\max}}{Q^{-1} T} \right)^2 - 1} \right] \quad (5)$$

得到  $\ln \tau - T$  数据。公式 (5) 中,  $\omega$  为振动角频率,  $T_{\max}$  为内耗  $Q^{-1} = Q_{\max}^{-1}$  时对应的温度, 公式中的  $\pm$  号在  $T < T_{\max}$  时取  $+$  号。氧和氮的质量分数 ( $w$ ) 和原子个数百分比 ( $N$ ) 及对应的  $T_{\max}$  见表 1。

表 1 氧含量、氮含量及对应内耗曲线的  $T_{\max}$

Table 1 Concentration of oxygen or nitrogen and  $T_{\max}$  of their internal friction curves

O			N		
w/%	N/%	$T_{\max}/K$	w/%	N/%	$T_{\max}/K$
0.009	0.10	410.9	0.005	0.06	609.2
0.016	0.18	411.2	0.038	0.49	610.4
0.040	0.45	412.4	0.062	0.80	612.0
0.081	0.92	416.7	0.076	0.98	613.2
0.121	1.37	424.3	0.114	1.47	621.6
0.163	1.84	433.8			

## 2 结果和讨论

在图 1 内耗曲线的右端 (图中箭头所示),  $T < T_{\max}$ , 为相对低温部分, 温度对弛豫元耦合的影响较小, 选作本文讨论的对象, 得到不同氧的原子个数百分比 [ $N(O)$ ] 的  $\ln \tau - T$  关系如图 3 所示, 其中的实线为标准差 SD 最小值时广义 Arrhenius 方程的拟合曲线。

对图 3 中不同氧的原子个数百分比 [ $N(O)$ ] 的  $\ln \tau - T$  数据, 从 0 K 开始, 预设不同的  $T_0$  代替  $T_c$ , 以公式 (3) 进行曲线拟合, 拟合参数为  $\ln \tau_0$  和  $\Delta G/k$ , 得到不同的标准差平方  $SD^2$ , 对不同  $N(O)$  Ta-O 得到的结果如图 4 所示。

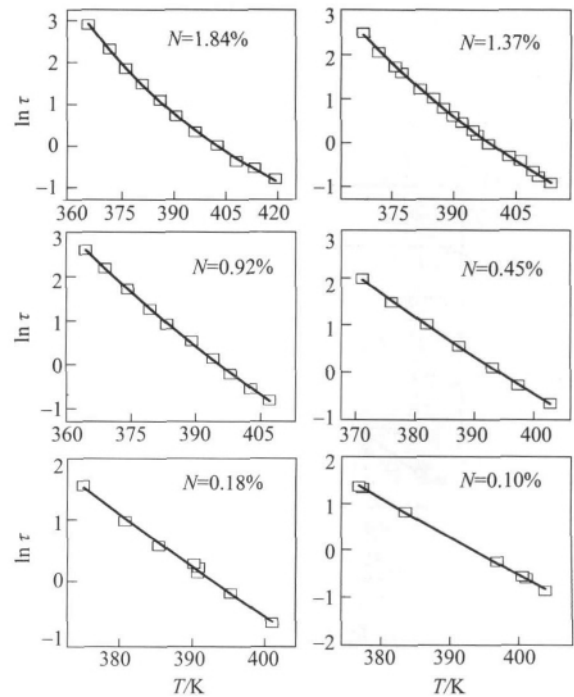


图 3 不同  $N(O)$  Ta-O 的  $\ln \tau - T$  关系

Fig. 3 Plots of  $\ln \tau$  vs  $T$  of tantalum with different concentration of oxygen

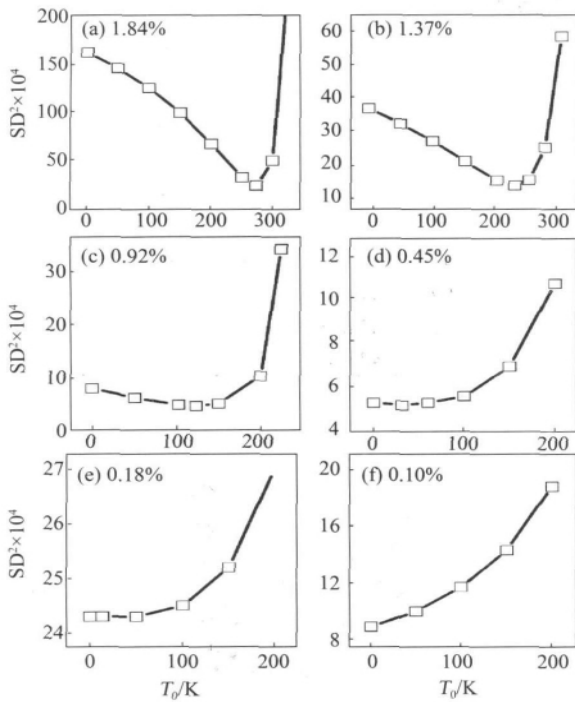


图 4 不同  $N(O)$  Ta-O 的  $T_0$ - $SD^2$  关系  
 Fig. 4 Plots of  $T_0$  vs  $SD^2$  of tantalum with different concentration of oxygen

在标准差平方  $SD^2$  最小值附近, 把  $\ln \tau_0$ 、 $\Delta G/k$  和  $T_c$  作为拟合参数, 得到标准差平方  $SD^2$  最小值时不同  $N(O)$  Ta-O 的自发有序温度  $T_c$  (见图 5)、 $\ln \tau_0$  (见图 6 (b)) 和表观激活自由能  $\Delta G$  (见图 6 (a))。

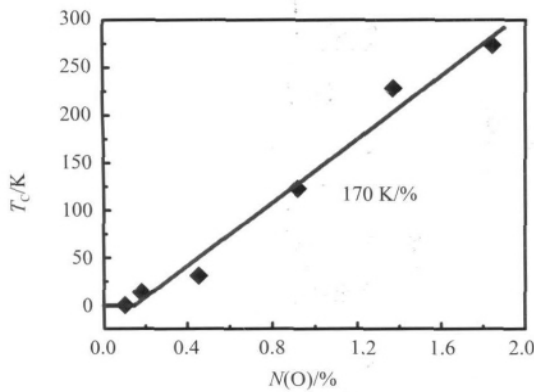


图 5 不同  $N(O)$  Ta-O 的自发有序温度  $T_c$   
 Fig. 5 Self-induced ordering temperature  $T_c$  of tantalum with different concentration of oxygen

由图 5 可以看出,  $N(O)$  超过一定浓度, 自发有序温度  $T_c$  与  $N(O)$  基本上成正比的关系, 斜率约为 170 K/%。自发有序温度  $T_c$  与弛豫元之间的

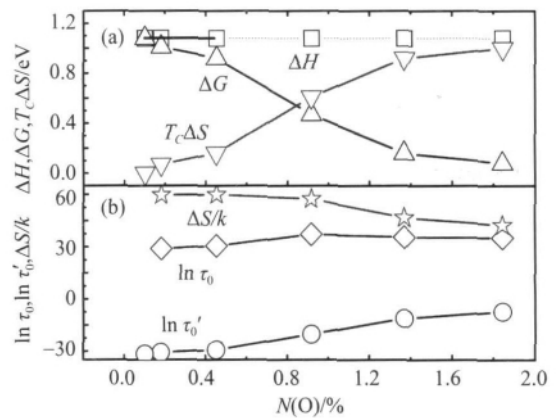


图 6 不同  $N(O)$  Ta-O 的  $\Delta H$ 、 $\Delta G$ 、 $T_c\Delta S$ 、 $\ln \tau_0$ 、 $\Delta S/k$  和  $\ln \tau'_0$  结果

Fig. 6  $\Delta H$ ,  $\Delta G$ ,  $T_c\Delta S$ ,  $\ln \tau_0$ ,  $\Delta S/k$  and  $\ln \tau'_0$  of tantalum with different concentration of oxygen

耦合有关, 耦合越强,  $T_c$  越高。图 5 的结果显示,  $N(O)$  较低时,  $T_c = 0$ , 弛豫元之间没有耦合, 随着  $N(O)$  的增加, 氧原子之间的耦合增加。

由图 6 可以看出, 随着  $N(O)$  的增加,  $\ln \tau_0$  增加, 表观激活自由能  $\Delta G$  下降。

以  $T_c$  附近的温度  $T_0$  代替  $T_c$  代入公式 (3), 得到不同的  $\Delta G$ , 对  $T_0 - \Delta G$  数据作图, 线性拟合的截距为激活焓  $\Delta H$ , 斜率的负值为熵的变化  $\Delta S$ 。

对较低  $N(O)$  的 3 个 Ta-O 固溶体 ( $N = 0.10\%$ 、 $0.18\%$  和  $0.45\%$ ), 表观激活自由能  $\Delta G$  由 1.08 eV 下降至 1.01 和 0.92 eV, 得到的激活焓  $\Delta H$  都是 1.08 eV, 说明激活焓  $\Delta H$  与弛豫元本身的性质有关, 该结果与文献 [9] 中 Ta-O 固溶体激活焓  $\Delta H = 1.09$  eV 十分接近。

对较高  $N(O)$  的 3 个 Ta-O 固溶体 ( $N = 0.92\%$ 、 $1.37\%$  和  $1.84\%$ ),  $T_c$  附近标准差  $SD$  变化急剧 (见图 4),  $T_c$  附近的标准差  $SD$  偏大, 得到的  $\Delta G$  已经不可靠, 故以上线性拟合计算激活焓  $\Delta H$  和熵的变化  $\Delta S$  的方法不适用。由于激活焓  $\Delta H$  与弛豫元本身的性质有关, 故以较低  $N(O)$  的激活焓  $\Delta H = 1.08$  eV 来表示不同  $N(O)$  的激活焓  $\Delta H$  (图 6 中以虚线表示), 利用已经得到的表观激活自由能  $\Delta G$  和自发有序温度  $T_c$  计算组态熵的贡献  $T_c\Delta S$  和  $\Delta S/k$ , 如图 6 所示。

由图 6 (a) 可以看出, 随着  $N(O)$  的增加, 氧原子之间的耦合增加, 自发有序温度  $T_c$  升高,  $T_c\Delta S$  对表观激活自由能  $\Delta G$  的影响增大, 使  $\Delta G$  下降。

利用以上计算得到的  $\ln \tau_0$  和  $\Delta S/k$ , 由公式 (4) 可以得到不同  $N(O)$  的  $\ln \tau'_0$ , 如图 6 (b) 所示。从图中可看出, 随着  $N(O)$  的增加,  $\ln \tau_0$

增加,  $\Delta S/k$  下降, 但  $\ln \tau'_0$  基本不随  $N(O)$  变化, 这是因为指数前因子  $\tau_0$  包含了熵的贡献,  $\tau'_0$  才是反映弛豫元本身性质的物理量。

$\ln \tau'_0$  基本不随  $N(O)$  变化说明不同  $N(O)$  的弛豫元是相同的, 也验证了以上使用同一个激活焓  $\Delta H = 1.08 \text{ eV}$  进行计算是合理的。因为由同一个激活焓  $\Delta H$  出发, 计算熵的变化  $\Delta S$  和  $\ln \tau'_0$ , 最后得到的“ $\ln \tau'_0$  基本不随氧含量变化”这一结果与“同一个激活焓  $\Delta H$ ”这一条件是自洽的, 说明了不同  $N(O)$  的弛豫元是相同的, 是耦合的单个弛豫元。

以同样的方法对图 2 中不同氮的原子个数百分比  $[N(N)]\text{Ta-N}$  的内耗曲线进行讨论, 得到不同  $N(N)\text{Ta-N}$  的  $\ln \tau - T$  关系 (见图 7, 其中的实线为标准差  $SD$  最小时广义 Arrhenius 方程的拟合曲线), 不同  $N(N)\text{Ta-N}$  的  $T_0 - SD^2$  关系 (见图 8), 不同  $N(N)\text{Ta-N}$  的自发有序温度  $T_c$  (见图 9), 和不同  $N(N)\text{Ta-N}$  的  $\Delta H$ 、 $\Delta G$ 、 $T_c \Delta S$ 、 $\ln \tau_0$ 、 $\Delta S/k$  和  $\ln \tau'_0$  结果 (见图 10)。

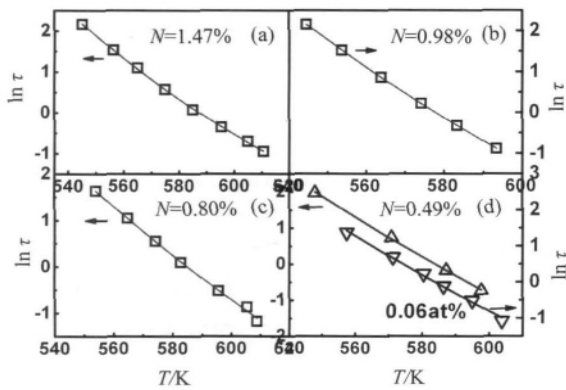


图 7 不同  $N(N)$  Ta-N 的  $\ln \tau - T$  关系  
Fig. 7 Plots of  $\ln \tau$  vs  $T$  of tantalum with different concentration of nitrogen

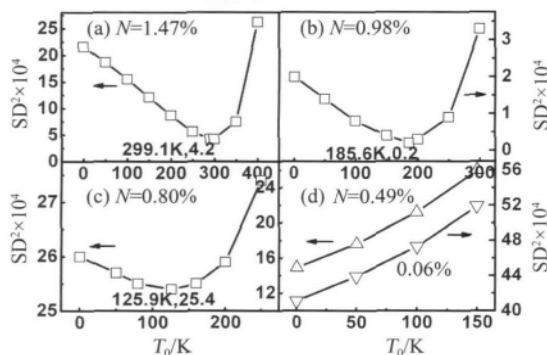


图 8 不同  $N(N)$  Ta-N 的  $T_0 - SD^2$  关系  
Fig. 8 Plots of  $T_0$  vs  $SD^2$  of tantalum with different concentration of nitrogen

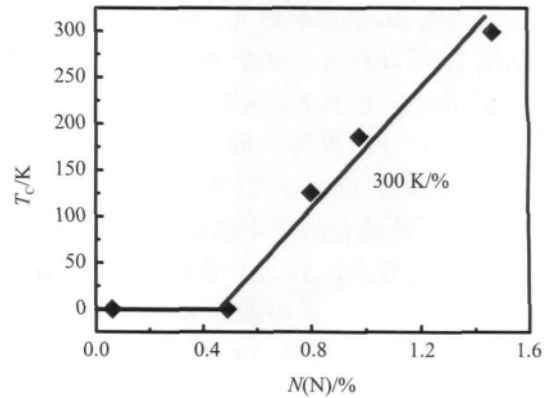


图 9 不同  $N(N)$  Ta-N 的自发有序温度  $T_c$   
Fig. 9 Self-induced ordering temperature  $T_c$  of tantalum with different concentration of nitrogen

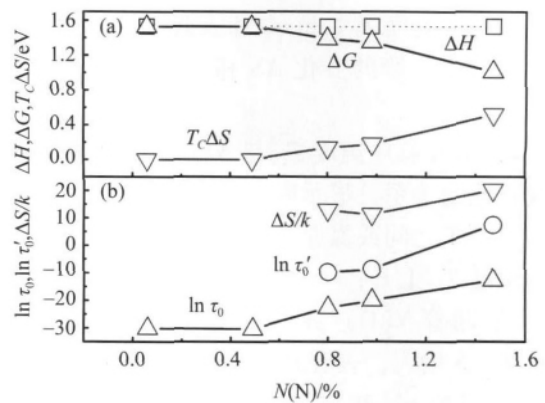


图 10 不同  $N(N)$  Ta-N 的  $\Delta H$ 、 $\Delta G$ 、 $T_c \Delta S$ 、 $\ln \tau_0$ 、 $\Delta S/k$  和  $\ln \tau'_0$  结果  
Fig. 10  $\Delta H$ ,  $\Delta G$ ,  $T_c \Delta S$ ,  $\ln \tau_0$ ,  $\Delta S/k$  and  $\ln \tau'_0$  of tantalum with different concentration of nitrogen

由图 9 可以看出,  $N(N)$  超过一定浓度, 自发有序温度  $T_c$  与  $N(N)$  基本上成正比的关系, 斜率约为  $300 \text{ K}/\%$ 。图 9 的结果显示,  $N(N)$  较低低时,  $T_c = 0$ , 弛豫元之间没有耦合, 然后随着  $N(N)$  的增加, 氮原子之间的耦合增加。与图 5 比较, 自发有序温度  $T_c$  随  $N(N)$  的升高比随  $N(O)$  的升高快, 可能与  $N-N$  之间的相互作用较大有关。

对较低  $N(N)$  的 2 个 Ta-N 固溶体 ( $N = 0.06\%$  和  $0.49\%$ ) 得到的激活焓  $\Delta H$  分别是  $1.52$  和  $1.53 \text{ eV}$ , 该结果与文献 [9] 中 Ta-N 固溶体激活焓  $\Delta H = 1.59 \text{ eV}$  十分接近。以较低  $N(N)$  的激活焓  $\Delta H = 1.53 \text{ eV}$  来表示不同  $N(N)$  的激活焓  $\Delta H$ , 利用已经得到的表观激活自由能  $\Delta G$  和自发有序温度  $T_c$  计算组态熵的贡献  $T_c \Delta S$  和  $\Delta S/k$  (见图 10), 结果显示, 随着  $N(N)$  的增加, 氮原子之间的耦合增加, 自发有序温度  $T_c$  升高,  $T_c \Delta S$  对表

观激活自由能  $\Delta G$  的影响增大, 使  $\Delta G$  下降。

从图 10 可以看出, 随着  $N(N)$  的增加,  $\ln \tau_0$  增加, 但  $\ln \tau'_0$  在 0.8% ~ 1.0% 范围基本不随  $N(N)$  变化, 这一结果与“同一个激活焓  $\Delta H$ ”这一条件是自洽的, 说明了  $N(N)$  不太大时的弛豫元是相同的, 是耦合的单个弛豫元。 $N(N)$  较大时,  $\ln \tau'_0$  变化较大,  $\Delta S$  变化也较大, 显示弛豫元发生了变化, 可能出现弱耦合的弛豫元对等, 使  $\Delta S$  增大, 这时使用较低  $N(N)$  的激活焓  $\Delta H = 1.53 \text{ eV}$  已不适宜。

### 3 结 论

以广义 Arrhenius 方程对 Ta 间隙固溶体的内耗数据进行曲线拟合, 得到不同  $N(O)$  和不同  $N(N)$  的自发有序温度  $T_c$ 、 $\ln \tau_0$  和表观激活自由能  $\Delta G$ 、激活焓  $\Delta H$ 、熵的变化  $\Delta S$  和  $\ln \tau'_0$ , 得到以下结论:

1) 自发有序温度  $T_c$  与  $N(O)$  或  $N(N)$  基本上成正比的关系, 显示随着  $N(O)$  及  $N(N)$  的增加, 氧原子之间或氮原子之间的耦合增加, 使自发有序温度  $T_c$  上升;

2) 随着  $N(O)$  或  $N(N)$  的增加, 组态熵的贡献  $T_c \Delta S$  增大, 表观激活自由能  $\Delta G$  下降;

3) 参数  $\tau'_0$  基本不随氧含量变化, 这一结果与“不同含氧量具有同一个激活焓  $\Delta H$ ”这一条件是自洽的, 说明了在讨论的  $N(O)$  范围弛豫元是相同的, 是耦合的单个弛豫元;

4)  $N(N)$  小于 1.0% 时, 弛豫元是耦合的单个弛豫元;  $N(N)$  较大时, 弛豫元发生变化, 可能出现弱耦合的弛豫元对等, 使  $\Delta S$  增大。

#### 参考文献:

[1] NOWICK A S, BERRY B S. Anelastic relaxation in crystalline solids [M]. New York: Academic Press, 1972.

- [2] 葛庭燧. 固体内耗理论基础(晶界弛豫与晶界结构) [M]. 北京: 科学出版社 2000.
- [3] 朱震刚, 郭丽君, 尚淑英. 能量耗散技术探索液态物质结构的新进展 [J]. 物理学进展, 2006, 26(3/4): 283 - 288.
- [4] 张进修, 熊小敏, 丁喜冬, 等. 凝聚态物质的切变波共振吸收谱仪的工作原理 [J]. 中山大学学报: 自然科学版, 2001, 40(S1): 283 - 288.
- [5] 林国淙, 熊小敏, 丁喜冬, 等. 液体膜切变波共振吸收谱仪的研制与应用 [J]. 中山大学学报: 自然科学版, 2005, 44(4): 129 - 131.
- [6] LIDIART A B. Encyclopedea of Physics [M]. Berlin: Springer, 1957.
- [7] DIENES J G, VINEYARD G H. Radiation Effects in Solids [M]. New York: Wiley (inter-science), 1957.
- [8] ANGELL C A, NGAI K L, MCKENNA G B, et al. Relaxation in glassforming liquids and amorphous solids [J]. J Appl Phys, 2000, 88(6): 3113 - 3157.
- [9] KIVELSON S A, ZHAO X, KIVELSON D, et al. Frustration-limited clusters in liquids [J]. J Chem Phys, 1994, 101: 2391 - 2397.
- [10] TANG X P, GEYER U, BUSCH R, et al. Diffusion mechanisms in metallic supercooled liquids and glasses [J]. Nature, 1999, 420: 160 - 162.
- [11] 陈岚. 广义 Arrhenius 关系及其在材料研究中的应用 [D]. 广州: 中山大学 2007.
- [12] POWER R W. Internal friction in solid solutions of oxygen-tantalum [J]. Acta Metallurgical, 1955, 3: 135 - 139.
- [13] POWER R W, MARGRET V D. Internal friction in solid solutions of tantalum [J]. Acta Metallurgical, 1956, 4: 233 - 242.
- [14] WELLER M, LI G Y, ZHANG J X, et al. Accurate determination of activation enthalpies associated with the stress-induced migration of oxygen or nitrogen in tantalum and niobium [J]. Metallurgica, 1981, 29: 1047 - 1054.