

# Nghiên cứu ảnh hưởng của hiệu ứng đồng vị đến hệ số Debye-Waller của các tinh thể khí hiếm

Investigation of isotopic effects in Debye-Waller factors of rare-gas crystals

Huỳnh Mai Thuận<sup>a</sup>, Nguyễn Phước Thế<sup>b</sup>, Hồ Khắc Hiếu<sup>b,c\*</sup>  
Huynh Mai Thuan<sup>a</sup>, Nguyen Phuoc The<sup>b</sup>, Ho Khắc Hiếu<sup>b,c,\*</sup>

<sup>a</sup>Trường Hermann Gmeiner Đà Nẵng, Đà Nẵng

<sup>a</sup>Danang Hermann Gmeiner High School, Da Nang

<sup>b</sup>Khoa Môi trường và Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

<sup>b</sup>Department of Environment and Natural Science, Duy Tan University, 550000, Danang Vietnam

<sup>c</sup>Viện Nghiên cứu và Phát triển Công nghệ Cao, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

<sup>c</sup>Institute of Research and Development, Duy Tan University, 550000, Danang Vietnam

(Ngày nhận bài: 21/10/2023, ngày phản biện xong: 31/10/2023, ngày chấp nhận đăng: 08/11/2023)

## Tóm tắt

Trong bài báo này, ảnh hưởng hiệu ứng đồng vị đến hệ số Debye-Waller của tinh thể khí hiếm được chúng tôi nghiên cứu dựa trên phương pháp thống kê mômen trong cơ học thống kê. Cách tiếp cận này cho phép chúng tôi nghiên cứu hiệu ứng đồng vị có kể đến ảnh hưởng phi điều hòa do dao động nhiệt của mạng tinh thể. Sử dụng thế Lennard-Jones để mô tả thế năng tương tác giữa các nguyên tử của tinh thể lượng tử, chúng tôi thực hiện tính số cho các đồng vị của các tinh thể Ne (<sup>20</sup>Ne và <sup>22</sup>Ne) và Ar (<sup>36</sup>Ar và <sup>40</sup>Ar) trong khoảng nhiệt độ từ 0 K đến nhiệt độ nóng chảy của các tinh thể. Sự khác biệt về hệ số Debye-Waller giữa các đồng vị được cho là có nguyên nhân bởi sự khác nhau về khối lượng nguyên tử của các đồng vị. Ngoài ra, sự khác nhau đáng chú ý giữa hệ số Debye-Waller của các đồng vị có thể được quan sát rõ ràng ở nhiệt độ thấp (khoảng dưới 15 K) và giảm dần ở nhiệt độ cao (trên 20 K). Điều này được giải thích là do sự khác biệt của đóng góp dao động điểm 0 ở nhiệt độ thấp và sự chiếm ưu thế của hiệu ứng phi điều hòa do dao động mạng ở vùng nhiệt độ cao. Nghiên cứu này cho thấy phương pháp thống kê mômen có thể được sử dụng hiệu quả để nghiên cứu ảnh hưởng của đồng vị lên đại lượng nhiệt động của vật liệu.

*Từ khóa:* Hiệu ứng đồng vị, Thống kê mômen, Hệ số Debye-Waller, Tinh thể khí hiếm.

## Abstract

In this work, the isotopic effects in Debye-Waller factor of noble gas crystals are studied based on the statistical moment method in statistical mechanics. This approach allows us to study the isotopic effects taking into account the anharmonicity caused by thermal lattice vibrations of the crystal. By using the Lennard-Jones potential to describe the interaction between atoms of quantum crystals, we perform numerical calculations for Ne (<sup>20</sup>Ne and <sup>22</sup>Ne) and Ar (<sup>36</sup>Ar and <sup>40</sup>Ar) isotopes in the temperature range from 0 K to the melting temperature of crystals. The difference in the Debye-Waller factors between the isotopes is believed to be attributed to the difference of atomic mass of the isotopes. Additionally, the significant difference in Debye-Waller factors between the isotopes becomes distinctly observable at low temperatures (below 15 K) and diminishes gradually at higher temperatures (above 20 K). This is explained by the disparity in the contribution of the zero-point vibrations at low temperatures and the prevalence of anharmonic effects

\*Tác giả liên hệ: Hồ Khắc Hiếu

Email: hieuhk@duytan.edu.vn

caused by lattice vibrations at high temperatures. This study shows that the statistical moment method can be effectively used to study the influence of isotopes on thermodynamic quantities of materia.

*Keywords:* Isotopic effects, Statistical moment method, Debye-Waller factor, Rare-gas crystal.

©2023 Bản quyền thuộc Đại học Duy Tân

## 1. Mở đầu

Trong thời gian gần đây, các nhà khoa học từ nhiều ngành khác nhau như khoa học vật liệu, vật lý áp suất cao và địa vật lý rất quan tâm đến tính chất cơ, nhiệt động của các tinh thể khí hiếm. Các chất rắn này ổn định ở nhiệt độ và áp suất cao khiến chúng trở thành lựa chọn phổ biến để sử dụng làm môi trường áp suất thủy tĩnh trong các thí nghiệm ô mạng để kim cương. Hơn nữa, do tính chất trơ và có cấu trúc lập phương đơn giản với cấu hình điện tử vô tương tự như cấu hình nguyên tử tự do, chất rắn khí hiếm trở thành ứng cử viên lý tưởng được sử dụng để xác minh các mô hình vật lý [1,2].

Nhiều bài báo đã nghiên cứu ảnh hưởng của khối lượng đồng vị đến các tính chất vật lý của tinh thể khí hiếm. Sự khác biệt về khối lượng này có thể ảnh hưởng đến hằng số mạng, độ dẫn nhiệt, tần số dao động phonon, nhiệt dung riêng và các tính chất điện tử khác. Về mặt thực nghiệm, các tính chất cấu trúc và nhiệt động của các đồng vị neon đã được xác định như nhiệt dung riêng đẳng tích và đẳng áp [3], hệ số giãn nở nhiệt tuyến tính [4]. Về mặt lý thuyết, có nhiều cách tiếp cận (chẳng hạn như phép tính gần đúng điều hòa tự hợp của Koehler [5], mô phỏng Monte Carlo tích phân đường [6] và cách tiếp cận ab initio trong mô hình Tolpygo bao gồm cả sự biến dạng của lớp vỏ electron [7]) đã được sử dụng để xem xét các tính chất cơ nhiệt phụ thuộc vào nhiệt độ của các đồng vị neon. Nhiều nghiên cứu lý thuyết cũng như thực nghiệm cũng đã được thực hiện để định lượng cũng như nghiên cứu các tính chất vật lý của đồng vị argon [8,9]. Phương pháp mômen thống kê (SMM) là một trong những phương pháp hiệu quả trong cơ học thống kê để nghiên cứu các tính

chất nhiệt động và cơ học của vật liệu [10–13]. Phương pháp này có một số ưu điểm như có thể đến tính phi điều hòa của các dao động nhiệt ở nhiệt độ cao cũng như đóng góp của năng lượng điểm 0 ở nhiệt độ thấp. Trong bài báo này, sử dụng SMM trong cơ học thống kê làm cơ sở [14], chúng tôi nghiên cứu ảnh hưởng của nhiệt độ đến hệ số Debye-Waller của các đồng vị của Ne và Ar.

Trong Phần II, chúng tôi trình bày SMM có kể đến các hiệu ứng phi điều hòa để xây dựng biểu thức của hệ số Debye-Waller phụ thuộc nhiệt độ. Trong Phần III, sử dụng kết quả giải tích thu được ở Phần II, chúng tôi thực hiện tính số hệ số Debye-Waller cho các đồng vị của tinh thể Ne và Ar dưới dạng hàm của nhiệt độ và khối lượng đồng vị. Thảo luận chi tiết về các kết quả tính số cũng được chúng tôi trình bày trong phần này. Cuối cùng là phần kết luận của nghiên cứu được đưa ra trong Phần IV.

## 2. Phương pháp tiếp cận

Trong phần này, chúng tôi tóm lược một số kết quả chính của phương pháp SMM trong nghiên cứu tính chất nhiệt động của tinh thể. Giả sử Hamiltonian của hệ lượng tử có dạng

$$\hat{H} = \hat{H}_0 - \alpha \hat{V}, \quad (1)$$

với  $\alpha$  là tham số và  $\hat{V}$  là toán tử tùy ý.

Khi đó, năng lượng tự do của hệ có thể được xác định bởi [14]

$$\psi(\alpha) = \psi_0 - \int_0^\alpha \langle \hat{V} \rangle_\alpha d\alpha, \quad \hat{V}_\alpha = -\frac{\partial \psi(\alpha)}{\partial \alpha}, \quad (2)$$

Bằng cách khai triển thế năng tương tác  $\varphi(r)$  giữa các nguyên tử đến bậc 4 và sử dụng công thức truy hồi giữa các mômen bậc cao và mômen bậc thấp, các tác giả đã thu được phương trình sau [10]

$$\gamma\theta^2 \frac{d^2 y}{da^2} + 3\gamma\theta y \frac{dy}{da} + ky + \frac{\gamma\theta}{k}(X-1)y - p = 0, \quad (3)$$

trong đó  $y = \langle u_i \rangle$ ,  $x = \hbar\omega/2\theta$ ,  $X = x \coth x$ ,  $\theta = k_B T$  ( $k_B$  là hằng số Boltzmann),  $m$  là khối lượng nguyên tử và

$$k = \frac{1}{2} \sum_i \frac{\partial^2 \varphi_{i0}}{\partial u_i^2} = m\omega^2, \\ \gamma = \frac{1}{12} \left\{ \sum_i \left[ \left( \frac{\partial^4 \varphi_{i0}}{\partial u_{ix}^4} \right)_{eq} + 6 \left( \frac{\partial^4 \varphi_{i0}}{\partial u_{ix}^4 \partial u_{iy}^4} \right)_{eq} \right] \right\}. \quad (4)$$

Có thể thấy (3) là một phương trình vi phân bậc hai của  $y$ . Nghiệm của phương trình (3) có thể được xác định gần đúng bởi [14]

$$y = y_0 + A_1 a, \quad (5)$$

trong đó,  $y_0$  là độ dèi của nguyên tử khối nút mạng trong trường hợp không có ngoại lực tác dụng.

Giá trị độ dèi  $y_0$  được xác định bởi

$$y_0 \approx \sqrt{\frac{2\gamma\theta^2 A}{3k^3}}, \quad (6)$$

trong đó  $A = a_1 + \frac{\gamma^2\theta^2}{k^4}a_2 + \frac{\gamma^3\theta^3}{k^6}a_3 + \frac{\gamma^4\theta^4}{k^8}a_4 + \frac{\gamma^5\theta^5}{k^{10}}a_5 + \frac{\gamma^6\theta^6}{k^{12}}a_6$  với các hệ số  $a_i$  ( $i = \overline{1,6}$ ) có dạng như ở tài liệu [14] và hệ số  $A_1$

$$A_1 = \frac{1}{k} \left[ 1 + \frac{2\gamma^2\theta^2}{k^4} \left( 1 + \frac{X}{2} \right) (X+1) \right]. \quad (7)$$

Khi xác định được độ dèi  $y_0$ , chúng ta có thể xác định khoảng cách lân cận gần nhất  $a(T)$  giữa hai nguyên tử ở nhiệt độ  $T$

$$a(T) = y_0(T) + a_0, \quad (8)$$

với  $a_0$  là khoảng cách lân cận gần giữa hai nguyên tử ở nhiệt độ  $T = 0$  K.

Độ dịch chuyển tương đối trung bình bình phương MSD hay hệ số Debye-Waller của phổ EXAFS được định nghĩa [15]

$$\sigma^2 = \left\langle \left[ \vec{R} \cdot (\vec{u}_i - \vec{u}_0) \right]^2 \right\rangle = \langle u_i^2 \rangle + \langle u_0^2 \rangle - 2\langle u_i u_0 \rangle, \quad (9)$$

ở đây  $\vec{R}$  là vector đơn vị hướng từ nguyên tử thứ  $i$  đến nguyên tử 0.

Trong SMM, chúng ta có mối liên hệ giữa các moment bậc một và bậc hai như sau [14]

$$\langle u_{i\alpha} u_{i\gamma} \rangle_p = \langle u_{i\alpha} \rangle_p \langle u_{i\gamma} \rangle_p + \theta \frac{\partial \langle u_{i\alpha} \rangle_p}{\partial a_\gamma} + \frac{\hbar \delta_{\alpha\gamma}}{2m\omega} \coth \left( \frac{\hbar\omega}{2\theta} \right) - \frac{\theta \delta_{\alpha\gamma}}{m\omega^2}. \quad (10)$$

Sử dụng phương trình (10), chúng ta dễ dàng thu được biểu thức xác định độ dịch chuyển trung bình bình phương (MSD) của nguyên tử trong tinh thể bởi

$$\langle u^2 \rangle = y_0^2 + \theta A_1 + \frac{\theta}{k}(X-1). \quad (11)$$

Đối với các tinh thể có cấu trúc lập phương đơn giản như các tinh thể lập phương tâm diện (FCC) thì hàm MSD  $\langle u^2 \rangle$  là đối xứng theo các phương khác nhau. Mặt khác, khi nghiên cứu một hệ rất lớn so với độ dài tương quan của độ dời  $u_i$  thì trừ các nguyên tử lân cận, độ dời  $u_i$  của hạt thứ  $i$  có thể xem là độc lập với độ dời  $u_0$ . Do đó, chúng tôi sử dụng các biểu thức gần đúng sau [15]

$$\langle u_i^2 \rangle \approx \langle u_0^2 \rangle \quad \text{và} \quad \langle u_i u_0 \rangle \approx \langle u_i \rangle \langle u_0 \rangle. \quad (12)$$

Khi đó, biểu thức hệ số Debye-Waller phổ EXAFS (9) trở thành [15]

$$\sigma^2 \approx 2\langle u_i^2 \rangle - 2\langle u_i \rangle^2 = 2\theta A_1 + \frac{2\theta}{k}(X-1). \quad (13)$$

Kết hợp với biểu thức (7) chúng tôi thu được biểu thức sự phụ thuộc nhiệt độ của hệ số Debye-Waller phổ EXAFS của các tinh thể cấu trúc FCC như sau

$$\sigma^2(T) \approx \frac{4\gamma^2\theta^3}{k^5} \left(1 + \frac{X}{2}\right)(X+1) + \frac{2\theta}{k}X. \quad (14)$$

Ở giới hạn nhiệt độ thấp, chúng tôi xác định được giá trị đóng góp điểm 0 của hệ số Debye-Waller phổ EXAFS là

$$\sigma^2(0) \equiv \sigma_0^2 = \frac{\hbar\omega}{k}. \quad (15)$$

### 3. Kết quả tính số và thảo luận

Trong phần này, từ biểu thức giải tích của hệ số Debye-Waller thu được ở Phần 2, chúng tôi thực hiện tính số cho các đồng vị của các tinh thể Ne ( $^{20}\text{Ne}$  và  $^{22}\text{Ne}$ ) và Ar ( $^{36}\text{Ar}$  và  $^{40}\text{Ar}$ ) trong khoảng nhiệt độ từ 0 K đến nhiệt độ nóng chảy của các tinh thể (24,6 K đối với Ne và 83,8 K đối với Ar). Đối với các tinh thể lượng tử, tương tác giữa các nguyên tử lân cận có thể được mô tả bởi hàm thế Lennard-Jones đơn giản. Trong bài báo này, thế Lennard-Jones (6-12) cũng được chúng tôi sử dụng để mô tả tương tác giữa các nguyên tử của tinh thể Ne và Ar. Đồng thời, chúng tôi giả định rằng, thế năng tương tác là như nhau cho các đồng vị của cùng một tinh thể. Hàm thế Lennard-Jones (6-12) có dạng

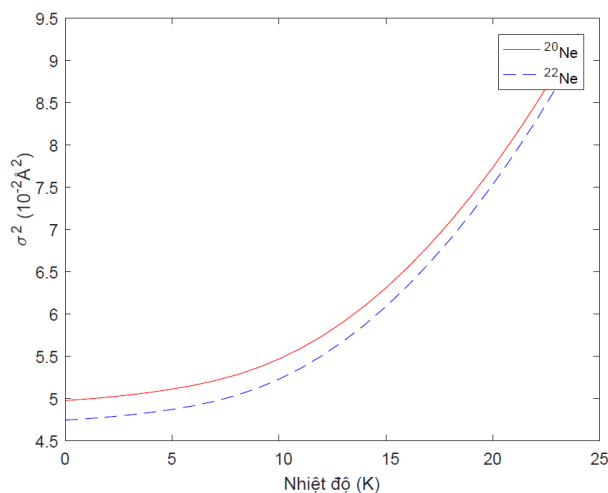
$$\varphi(r) = 4\varepsilon \left[ \left(\frac{r_0}{r}\right)^{12} - \left(\frac{r_0}{r}\right)^6 \right], \quad (16)$$

trong đó  $r_0$  là khoảng cách giữa các nguyên tử khi hệ ở trạng thái cân bằng,  $\varepsilon$  là năng lượng phân ly. Bảng giá trị các tham số thế của tinh thể Ne và Ar được chúng tôi đưa ra ở Bảng 1.

**Bảng 1.** Tham số thế Lennard-Jones của Ne và Ar.

Tinh thể	$\varepsilon/k_B$ (K)	$r_0$ (Å)
Ne [5]	52.21	2.7012
Ar [16]	119.8	3.4050

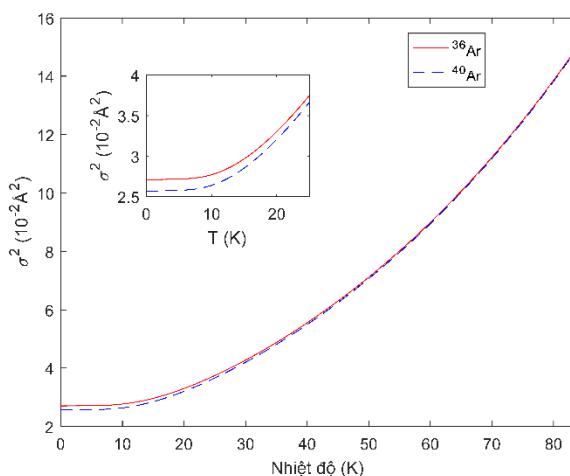
Trên Hình 1, chúng tôi biểu diễn sự phụ thuộc nhiệt độ của hệ số Debye-Waller của hai đồng vị  $^{20}\text{Ne}$  và  $^{22}\text{Ne}$  thu được bằng phương pháp SMM. Từ hình vẽ có thể nhận thấy, hệ số Debye-Waller của Ne đã bao hàm đóng góp của dao động điểm 0 ở nhiệt độ thấp. Giá trị hệ số Debye-Waller tại nhiệt độ  $T = 0\text{ K}$  của hai đồng vị  $^{20}\text{Ne}$  và  $^{22}\text{Ne}$  tương ứng là  $\sigma_0^2(^{20}\text{Ne}) = 4.98 \times 10^{-2} \text{ \AA}^2$ ,  $\sigma_0^2(^{22}\text{Ne}) = 4.74 \times 10^{-2} \text{ \AA}^2$ . Khi nhiệt độ tăng hệ số Debye-Waller cũng tăng nhanh theo nhiệt độ.



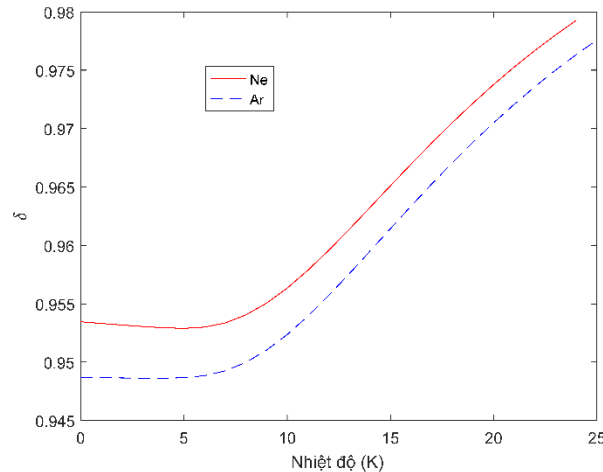
Hình 1. Sự phụ thuộc nhiệt độ của hệ số Debye-Waller của hai đồng vị  $^{20}\text{Ne}$  và  $^{22}\text{Ne}$ .

Ở đây cần chú ý rằng hệ số Debye-Waller của các đồng vị thể hiện sự khác biệt do sự khác nhau về khối lượng của chúng. Với khối lượng nhẹ hơn, đường cong  $\sigma^2(^{20}\text{Ne})$  cao hơn đường cong  $\sigma^2(^{22}\text{Ne})$ . Sự khác biệt giữa hệ số Debye-Waller của hai đồng vị  $^{20}\text{Ne}$  và  $^{22}\text{Ne}$  có thể được quan sát rõ ràng ở nhiệt độ thấp. Sự chênh lệch giảm dần ở nhiệt độ cao (trên 20 K) và sự khác biệt đáng chú ý có thể quan sát được dưới 15 K. Điều này có thể được giải thích như sau: Ở nhiệt

độ thấp, sự khác biệt giữa các hệ số Debye-Waller là do sự chênh lệch về đóng góp của dao động điểm 0 của hai đồng vị trong đó biên độ dao động nguyên tử của đồng vị nhẹ hơn lớn hơn biên độ dao động nguyên tử của đồng vị nặng hơn. Khi nhiệt độ tăng, hiệu ứng đồng vị giảm do đóng góp phi điều hòa của dao động mạng tăng nhanh và chiếm vai trò chủ đạo ở vùng nhiệt độ cao. Điều này cũng phù hợp với kết quả của giới hạn cổ điển ở nhiệt độ cao.



Hình 2. Sự phụ thuộc nhiệt độ của hệ số Debye-Waller của hai đồng vị  $^{36}\text{Ar}$  và  $^{40}\text{Ar}$ .



**Hình 3.** Sự phụ thuộc nhiệt độ của tỉ số  $\delta(\text{Ne}) = \sigma^2(^{22}\text{Ne})/\sigma^2(^{20}\text{Ne})$  và  $\delta(\text{Ar}) = \sigma^2(^{40}\text{Ar})/\sigma^2(^{36}\text{Ar})$ .

lượng  $m(^{20}\text{Ne})/m(^{22}\text{Ne}) = \sqrt{20/22} \approx 0.9535$   
 và  $m(^{36}\text{Ar})/m(^{40}\text{Ar}) = \sqrt{36/40} \approx 0.9487$ ,  
 tương tự như giá trị kỳ vọng trong gần đúng điều hòa ở nhiệt độ  $T = 0$  K [13].

#### 4. Kết luận

Trong bài báo này, chúng tôi đã sử dụng SMM có kể đến tính phi điều hòa của dao động mạng để nghiên cứu ảnh hưởng của sự chênh lệch khối lượng đồng vị đến hệ số Debye-Waller của tinh thể khí hiếm. Sử dụng thế Lennard-Jones để mô tả thế năng tương tác giữa các nguyên tử của tinh thể lượng tử, chúng tôi thực hiện tính số hệ số Debye-Waller cho các đồng vị của Ne và Ar trong khoảng nhiệt độ từ 0 K đến nhiệt độ nóng chảy của tinh thể. Sự khác biệt về hệ số Debye-Waller giữa các đồng vị được cho là có nguyên nhân bởi các hiệu ứng đồng vị phụ thuộc vào khối lượng nguyên tử của các đồng vị. Ngoài ra, sự khác nhau đáng chú ý giữa hệ số Debye-Waller của các đồng vị có thể được quan sát rõ ràng ở nhiệt độ thấp (khoảng dưới 15 K) và giảm dần ở nhiệt độ cao (trên 20 K). Điều này được giải thích là do sự khác biệt của đóng góp dao động điểm 0 ở nhiệt độ thấp và sự chiếm ưu thế của hiệu ứng phi điều hòa ở vùng nhiệt độ cao. Nghiên cứu này cho thấy SMM có thể được sử

dụng hiệu quả để nghiên cứu ảnh hưởng của đồng vị lên đại lượng nhiệt động của vật liệu.

#### Tài liệu tham khảo

- [1] Dewaele, A., Rosa, A. D., Guignot, N., Andrault, D., Rodrigues, J. E. F. S., and Garbarino, G. (2021). "Stability and equation of state of face-centered cubic and hexagonal close packed phases of argon under pressure". *Scientific Reports* 11, 15192.
- [2] Singh, A. N., Dyre, J. C., and Pedersen, U. R. (2021). "Solid-liquid coexistence of neon, argon, krypton, and xenon studied by simulations". *The Journal of Chemical Physics* 154, 134501.
- [3] Somoza, E., and Fenichel, H. (1971). "Isotope Effects in the Specific Heat of Solid Neon". *Phys. Rev. B* 3, 3434–3446.
- [4] Holste, J. C., and Swenson, C. A. (1975). "Experimental thermal expansions for solid neon, 2–14 K". *Journal of Low Temperature Physics* 18, 477–485.
- [5] Acocella, D., Horton, G. K., and Cowley, E. R. (2000). "Thermal and elastic properties of solid neon". *Phys. Rev. B* 61, 8753–8758.
- [6] Herrero, C. P. (2003). "Isotopic effect in the lattice parameter of rare-gas solids". *Journal of Physics: Condensed Matter* 15, 475.
- [7] Troitskaya, E. P., Chabanenko, v.v..., and Horbenko, E. E. (2009). "Lattice dynamics in light rare-gas crystals under pressure". *Physics of the Solid State* 51, 2121–2128.
- [8] Gloeckner, D. H., Lawson, R. D., and Serduke, F. J. D. (1973). "Properties of the Argon Isotopes". *Phys. Rev. C* 7, 1913–1926.
- [9] Mark, D. F., Stuart, F. M., and Podesta, M. de. (2011). "New high-precision measurements of the isotopic

- composition of atmospheric argon". *Geochimica et Cosmochimica Acta* 75, 7494–7501.
- [10] Masuda-Jindo, K., Hung, V. V., and Tam, P. D. (2003). "Thermodynamic quantities of metals investigated by an analytic statistical moment method". *Phys. Rev. B* 67, 094301.
- [11] Tang, N., and Hung, V. V. (1990). "Investigation of the Thermodynamic Properties of Anharmonic Crystals by the Momentum Method. III. Thermodynamic Properties of the Crystals at Various Pressures". *Phys. Stat. Sol. (b)* 162, 371–377.
- [12] Hieu, H. K. (2014). "Systematic prediction of high-pressure melting curves of transition metals". *Journal of Applied Physics* 116, 163505.
- [13] Ho, K. H., Nguyen, P. T., Huynh, N. T., Dang, T. H., and Vu, V. H. (2023). "Isotopic effect in thermodynamic properties of solid neon". *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* 630, 129272.
- [14] Tang, N., and Hung, V. V. (1988). "Investigation of the Thermodynamic Properties of Anharmonic Crystals by the Momentum Method. I. General Results for Face-Centred Cubic Crystals". *Phys. Stat. Sol. (b)* 149, 511–519.
- [15] Hieu, H. K., and Hung, V. V. (2013). "Pressure-dependent EXAFS mean-square relative displacements of germanium and silicon crystals". *High Pressure Research* 33, 768–776.
- [16] Hertanto Adidharma, S. P. T., and Radosz, M. (2002). "Prototype of an LJ solid equation of state applied to argon, krypton and methane". *Molecular Physics* 100, 2559–2569.